ORSAY

N° D'ORDRE 2707

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

JEAN CLAUDE LOULERGUE

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

Etude des déformations des interfaces induites par effet Marangoni dans un système diphasique

- Application à la conversion d'images infrarouges en visibles -

SOUTENUE LE 26 Mai 1983 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. A. MARECHAL	PRÉSIDENT
E. GUYON	
A. HADNI	
C. IMBERT	EXAMINATEURS
D. LANGEVIN	
J.C. LEHMANN	

LIBRARY
LUBBOCK
TEX.

ORSAY

N° D'ORDRE 2202

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

JEAN CLAUDE LOULERGUE

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

Etude des déformations des interfaces engendrées par

- effet Marangoni dans un système diphasique

- Application à la conversion d'images infrarouges en visibles -

SOUTENUE LE 30 Mai 1973 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. A. MARECHAL PRESIDENT

E. GUYON

A. JOINT

C. IMBERT EXAMINATEURS

D. LANGEVIN

J.C. LEHMANN

ORSAY

N° D'ORDRE 2707

THESE

DE DOCTORAT D'ETAT ES-SCIENCES PHYSIQUES

PRESENTEE A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

JEAN CLAUDE LOULERGUE

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES

Etude des déformations des interfaces induites par effet Marangoni dans un système diphasique

- Application à la conversion d'images infrarouges en visibles -

SOUTENUE LE 26 Mai 1983 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

MM. A. MARECHAL	PRÉSIDENT
E. GUYON	
A. HADNI	
C. IMBERT	EXAMINATEURS
D. LANGEVIN	
J.C. LEHMANN	

ABSTRACT

We have performed an experiment of thermal imaging system, based on the modulation of a liquid-liquid interface, due to the absorption of the infrared image by a two-phase system. The first part of this dissertation studies the surface deformation of the free surface of a thin liquid film, heated by non-uniform infrared radiation, then we consider the deflection of the liquid-liquid interface of two superposed fluid layers. It shown that this one is strongly enhanced relative to that of the free upper interface.

To obtain this result, we researched a lot of partially mixible liquids griving a very low interfacial tension, by using fluids of different mass-densities and index of refraction.

Making this deflection visible, with a shadowgraph by total reflection on the liquid-liquid interface, is the principle of a very sensitive IR-visible image converter.

Monsieur le Professeur André Maréchal, Directeur Général de l'Institut d'Optique d'Orsay, m'a permis de bénéficier de moyens de travail importants, sans lesquels cette thèse n'aurait pas pu être menée à bien. Je le remercie de son aïde et de l'intérêt constant qu'il a porté à la réussité du prototype industriel.

Je voudrais ici exprimer mon amitié et ma gratitude à Christian Imbert qui m'a proposé de travailler sur l'imagerie infrarouge. Qu'il sache combien j'ai apprécié la liberté que j'ai eue sous sa direction, et aussi le fait que je l'ai toujours trouvé présent pour me conseiller et m'aider à résoudre les problèmes que nous avons rencontrés.

En me faisant l'honneur de participer à mon jury de thèse malgré ses lourdes charges, Jean-Claude Lehmann confirme l'intérêt et le soutien qu'il apporte à travers ce travail, à l'Institut d'Optique et plus généralement à l'Optique en France. Je le remercie de la confiance qu'il m'a accordée.

Je dois beaucoup à Mr le professeur Etienne Guyon qui m'a aidé à découvrir et à comprendre les subtilités et les embûches de l'hydrodynamique. Tous ceux qui ont eu la chance de travailler avec lui imagineront sans peine le bénéfice que j'ai retiré de sa connaissance profonde de la physique, de sa rigueur scientifique et de son soucis constant de faire comprendre simplement les phénomènes.

Ma reconnaissance va aussi à Mr le professeur Armand Hadni qui, en tant que spécialiste de l'infrarouge s'est beaucoup intéressé à ce travail et a contribué à le faire connaître.

Je remercie Dominique Langevin de m'avoir fait profiter de sa connaissance profonde sur les interfaces liquides-liquides et de m'avoir aidé dans les mesures des très faibles tensions interfaciales, ce dont je lui suis reconnaissant

UNIV. LYON I

Yves Lévy a été associé à ce travail dès sa Genèse. C'est ensemble que nous avons réalisé toutes les expériences qui ont permis d'aboutir à ces résultats. Il n'a ménagé ni sa peine, ni son temps pour m'aider et bien souvent il a dû supporter ma mauvaise humeur. Ce travail porte la marque de ses avis éclairés et amicaux. Qu'il trouve ici mes plus sincères remerciements et mon amitié.

Je tiens à remercier Yves Pomeau et Paul Manneville d'avoir accepté d'interpréter l'expérience. Sans eux, ce travail n'aurait pas pu être mené à bien.

Je remercie Madame Dupeyrat qui m'a apporté une aide compétente dans le domaine des tensions interfaciales.

Les résultats rapportés dans ce mémoire ont été obtenus par une équipe = Gérard Roger, Mlle Taquet, Véronique Lanfant, Alain Harondel, Dominique Moncuit, et Michel Biet ont tour à tour participé à ce travail. Leurs qualités d'expérimentateurs et leur enthousiasme leur ont permis de jouer un rôle essentiel dans la réussite des expériences.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Mr Baboz, Directeur Technique, de la SOPELEM qui dans le cadre d'une aide à l'Innovation accordée par l'ANVAR m'a donné sa confiance pour réaliser un "thermographe infrarouge à interface liquide-liquide". Cette réalisation n'a pu être obtenue que grâce à la compétence de Messieurs Moirez et Grandjacques, Ingénieurs à la SOPELEM et à la qualité remarqua des services techniques de la société, aussi bien le Bureau d'Etudes que les ateliers de mécanique et d'Optique. Je les en remercie vivement.

Je ne saurais terminer sans remercier Madame CAIL et Nelly Bonavent, qui ont assuré le travail ingrat de la frappe de ce mémoire avec efficacité, et aussi avec beaucoup de gentillesse.

TABLE DES MATIERES

CHAPITRE I

INTRODUCTION GENERALE

Introduction

CHAPITRE II

RAPPELS DES EQUATIONS HYDRODYNAMIQUES DECRIVANT LE MOUVEMENT D'UN FLUIDE

I - INTRODUCTION

II - RAPPELS DES EQUATIONS HYDRODYNAMIQUES D'UN FLUIDE

A. Fluide parfait

1. Equation de continuité pour la masse.
2. Equation d'Euler (1755)
3. Deuxième principe de la thermodynamique
4. Existence d'un seuil sur le gradient thermique vertical pour avoir une convection libre.
5. Conclusion

B. Fluide visqueux

1. Le tenseur des contraintes visqueuses
2. Equation de Navier-Stokes
3. Conservation de l'énergie

C. Les conditions aux limites

1. Fluide parfait : a) Paroi solide
   b) Interface fluide-fluide plane.
2. Fluide visqueux a) Paroi solide
   b) Expression de la force agissant sur une paroi solide fixe par un fluide visqueux en mouvement (ou l'inverse)
   c) Interface fluide-fluide

III - INFLUENCE DES FORCES DE TENSION SUPERFICIELLE EN PRESENCE D'UN INTERFACE FLUIDE-FLUIDE

1. Forces en volume - Forces en surface
2. Forces de Marangoni - Flux de Marangoni
3. Les conditions aux limites en présence de forces de Marangoni

CHAPITRE III

ETUDE THEORIQUE DE LA REPONSE DES INTERFACES D'UN FLUIDE CONVECTANT SOUS L'ACTION DE FORCES DE MARANGONI ET D'ARCHIMEDE

I - INTRODUCTION

II - RAPPEL DES EXPERIENCES GOUVERNEES PAR L'EFFET MARANGONI

1. Instabilités de BENARD (1900)
2. Expériences de E. Heintz (1945)
3. Forces de Marangoni d'origine chimique

III - ETUDE DE LA REPONSE DE LA SURFACE LIBRE D'UNE MONOCOUCHE SOUMISE A UNE EXCITATION EXTERIEURE MODULEE SPATIALEMENT

A. Introduction

B. Calcul de l'amplitude de la déformation de la surface libre

1. Les hypothèses du calcul
2. Les équations hydrodynamiques linéarisées
3. Les conditions aux limites
4. Calcul de la pression p_1 dans le fluide
5. Calcul de l'amplitude $\overline{\xi}_1$ de la déformation de la surface
6. Calcul du coefficient C_1
7. Etude du risque de l'amplitude
8. Résolution de l'équation (14)
9. Comportement de l'amplitude de la déformation de la surface libre en fonction du pas p de la perturbation.

C. Conclusion

IV - ETUDE DE LA REPONSE DES INTERFACES D'UN SYSTEME BICOUCHE SOUMIS A UNE PERTURBATION THERMIQUE PERIODIQUE SPATIALEMENT

A. Introduction

B. Interface deflections

C. Discussion Générale sur le système bicouche

1. Comportement de l'amplitude de la déformation de l'interface liquide-liquide en fonction du pas de la perturbation thermique.
2. Comportement de l'amplitude $\overline{\xi}_{12}$ en fonction de la viscosité des liquides.
3. Comportement de l'amplitude de l'interface I_{12} en fonction de la constante capillaire
4. Comportement de la courbure de l'interface en fonction de la longueur d'onde de la perturbation.

D. Conclusion

CHAPITRE IV

ETUDE PHYSICO-CHIMIQUE D'UN MELANGE DIPHASIQUE BINAIRE ET TERNAIRE

I - INTRODUCTION

II - RAPPEL DES PROPRIETES DE LA TENSION SUPERFICIELLE

1. Energie superficielle et tension superficielle
2. Influence de la température
3. Influence de corps dissous
4. Condlusion sur la tension superficielle

III - ETUDE DU SYSTEME BINAIRE BROMONAPHTALENE + HUILE SI 200

A. Généralités

1. Mélange monophasique et diphasique
2. Composition des phases d'un mélange binaire
3. Variance du système
4. Coexistence des phases

B. Diagramme de coexistence du mélange - Bromonaphtalène + huile SI 200/3

1. Propriétés des constituants
2. Etude expérimentale du diagramme de coexistence des phases
   a) Méthode visuelle.
      α) Résultats expérimentaux
      β) Equation de la courbe de solubilité réciproque
      γ) Approximation du diamètre rectiligne
   b) Méthode des indices de réfraction
      α) Mode opératoire
      β) Analyse des résultats expérimentaux

IV - ETUDE EXPERIMENTALE DE LA VISCOSITE DU MELANGE BINAIRE SUR LA COURBE DE COEXISTENCE DES PHASES

1. Mesure de la viscosité cinématique du mélange
2. Résultats expérimentaux
3. Conclusion
4. Conclusion générale sur le diagramme de coexistence des phases du mélange binaire.

V - TENSION SUPERFICIELLE ET INTERFACIALE DU MELANGE BINAIRE

A. Généralités sur la tension interfaciale

1. Tension interfaciale et miscibilité réciproque des deux constituants
2. Tension interfaciale et température
3. Tension interfaciale et tension superficielle.

B. Etude expérimentale de la tension superficielle et interfaciale du système diphasique bromonaphtalène + huile SI 200/3 en fonction de la température

1. Mode opératoire
2. Résultats expérimentaux
3. Méthode du diamètre rectiligne

C. Conclusion sur les tensions superficielles du mélange binaire

VI - ETUDE EXPERIMENTALE DU SYSTEME DIPHASIQUE TERNAIRE : BROMONAPHTALENE + HUILE SI 200/0,65 IODONAPHTALENE

A. Etude du système ternaire diphasique

1. Définition du système ternaire
2. Définition du diagramme de coexistence d'un mélange ternaire
3. Détermination expérimentale du diagramme de coexistence
4. Interprétation des résultats

B. Propriétés de la tension interfaciale du mélange ternaire diphasique

1. Généralités
2. Mesures expérimentales
   a) Tensiomètre à balance
   b) Mesure de la tension interfaciale du mélange ternaire par diffusion de la lumière.
3. Etude de la tension interfaciale en fonction de la température
4. Conclusion sur le mélange ternaire

VII - CONCLUSION GENERALE SUR LES MELANGES DIPHASIQUES

CHAPITRE V

ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPONSE DU MELANGE BINAIRE DIPHASIQUE BROMONAPHTALENE + HUILE SI 200/3 A UN OBJET SPATIALEMENT PERIODIQUE

I - INTRODUCTION

II - JUSTIFICATION DU CHOIX DE LA METHODE UTILISEE

III - ETUDE OPTIQUE DE LA REPONSE DU SYSTEME DIPHASIQUE A UNE PERTURBATION THERMIQUE SPATIALEMENT PERIODIQUE

1. Introduction
2. Calcul de l'intensité observée dans un plan situé à une distance D de l'interface
3. Facteur de modulation de l'image d'une mire à profil sinusoïdal

IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX

a) Montage expérimental
b) Mesure de l'amplitude de la modulation par diffraction de Fraunhof
c) Observation de "l'image" de la modulation par diffraction de Fresn
d) Existence d'un plan de focalisation
e) Positions des plans à facteur de modulation minimum de l'image de la mire
f) conclusion

IV - CONCLUSION

CHAPITRE VI

APPLICATION DE L'EFFET MARANGONI A LA CONVERSION D'IMAGES INFRAROUGES EN IMAGES VISIBLES

I - INTRODUCTION

II - CALCUL D'UN ORDRE DE GRANDEUR DE L'ECHAUFFEMENT DE LA SURFACE LIBRE DU SYSTEM

1. Absorption IR du récepteur
2. Calcul de l'élévation de température de la surface libre du récepteur

III - DESCRIPTION DE L'APPAREIL

1) Fonctionnement du dispositif
2) Description des éléments
3) Résultats expérimentaux

a) Mélange binaire
b) mélange ternaire

IV - UNE EXPERIENCE PAR TRANSMISSION

A. Montage

B. Résultats

C. Comparaison des 2 méthodes

D. Conclusion

V - CONCLUSION

CHAPITRE VII

CONCLUSION GENERALE

CHAPITRE I

Introduction Générale

En 1800, l'astronome anglais Sir William Herschel écrit dans une communication à la Société Royale de Londres que la chaleur rayonnée par le soleil <<est au moins partiellement sinon principalement de la lumière invisible>>. Le fils de l'astronome, J.F. Herschel recevant le spectre solaire sur papier filtre noirci imbibé d'alcool, mit en évidence en 1840 les bandes d'absorption infrarouge qu'il contenait, par le fait qu'aux endroits où elles se formaient, l'alcool s'évaporait plus vite que dans le reste du spectre. La première expérience visualisant un rayonnement infrarouge venait d'être réalisée. Une centaine d'années plus tard cette idée fut reprise et donna lieu à la réalisation de nombreux appareils {1}. Depuis 1945, un effort technologique important a été fait, et les performances acquises actuellement sont remarquables : on peut en effet détecter et visualiser des gradients de température de l'ordre de 0,1°C sur un objet à température ambiante, situé à quelques mètres de l'appareil.

Cependant, ces dispositifs de haute technologie sont très chers. La mise au point d'autres méthodes utilisant une technologie beaucoup plus simple, donc moins onéreuse, permettrait d'accroître l'usage de la "thermovision infrarouge" dont les propriétés intéressent beaucoup de nombreux secteurs d'activités, comme la médecine, l'industrie, la sécurité, l'économie etc... Les recherches se sont tout d'abord orientées vers la mise au point de films photographiques spéciaux, mais leur réponse se limite au très proche infrarouge, vers 1 µm. L'évaporographe (voir annexe I) en est un exemple et l'avénement de tube à cible pyroélectrique {2}, ouvre une nouvelle voie dans ce domaine. C'est dans cet esprit que nous avons étudié ici, un nouveau procédé, simple et sensible, basé sur la modulation de l'interface liquide-liquide, déformée par l'absorption d'un rayonnement infrarouge.

C'est en 1946, qu'E. Heintz {3}, a imaginé d'utiliser le premier la convection dans les liquides pour réaliser une "photographie infrarouge". En projetant le rayonnement d'une lampe à filament de tungstène, dans une suspension mince (300 µm) d'alcool amylique et de particulers d'aluminium, il provoqua des tourbillons dans le liquide.

../..

La convection déposa en nombre plus ou moins grand sur le fond de la cuve les particules d'aluminium, reproduisant ainsi une image du corps émetteur. Il remarqua en outre, une déformation de la surface libre du liquide, à l'endroit irradié. L'explication de cette déformation resta pendant très longtemps obscure. Il suffit pour s'en convaincre d'étudier l'histoire de l'interprétation des expériences d'Instabilités de Bénard {4}. Il a fallu en effet, près de 60 ans pour comprendre le rôle important joué par la tension superficielle dans ces phénomènes, d'une part dans l'origine de la convection d'un fluide mince chauffé uniformément par sa base, d'autre part dans l'aspect caractéristique du profil que prend la surface libre sous l'action de cette convection.

Le principe fondamental de la détection d'un rayonnement infrarouge repose sur l'exploitation de cette déformation. Nous avons donc tout d'abord étudié le mécanisme de la déformation du fluide, dans le but de connaître l'influence des gradients de tension superficielle de la surface libre, dans la conduite de la convection, et le rôle joué par la tension superficielle dans la déformation de la surface libre.

L'établissement d'un écoulement dans un fluide avec une surface libre est analysé en tenant compte de la poussée d'Archimède et des forces de tractions horizontales sur la surface libre. L'origine de ces forces en surface, provient de la variation de la tension superficielle vis-à-vis de la température. Supposons qu'une goutte de fluide chaud soit déplacée vers le haut sous l'action de la force d'Archimède. Ce mouvement ascendant provoque à la surface de la couche, une élévation de la température, et un abaissement de la tension superficielle. A température uniforme, les forces de tension superficielle exercent une traction égale dans toutes les directions. A l'équilibre la surface libre est plane. A température non uniforme les forces horizontales ne sont plus en équilibre, et l'élément de surface est alors tiré de la région chaude vers la région froide, là ou la tension superficielle est plus grande. Le mouvement de la surface est communiqué à l'intérieur du fluide par l'intermédiaire de la viscosité de cisaillement. Une autre goutte de liquide est ensuite extraite des couches sous-jacentes plus chaudes, entretenant les gradients de température superficiels, et par conséquent de tension superficielle.

Pendant ce temps, le fluide refroidi, au cours de son trajet le long de la surface libre, redescend et un mouvement convectif s'établit. L'intéraction entre les forces d'Archimède et les forces de Marangoni (chercheur Italien du XIXème siècle) est subtile et complexe à la fois. Une manifestation du rôle respectif joué par ces deux forces, est illustrée par le comportement de la surface libre du fluide. Le sens de la déformation, vis-à-vis du flux convectif ascendant, est opposé, selon la prépondérance de l'une ou de l'autre des deux forces. L'étude théorique (chapitre III) de la convection d'une couche mince d'huile due à l'action conjointe de ces deux forces, a permis de prévoir ce comportement. La compétition des deux forces a été exprimée par une grandeur que nous avons appelée "longueur capillaire thermique". Elle a une signification physique semblable à celle de la "longueur capillaire mécanique".

La valeur de la tension superficielle de la surface libre du fluide est directement liée à l'amplitude de la déformation. L'étude développée au chapitre III a montré que si l'épaisseur du fluide est plus petite que sa longueur capillaire thermique et mécanique, la réponse de la surface libre du fluide échauffé est importante. Dans ces conditions, l'amplitude de la déformation s'exprime très simplement : elle est proportionnelle aux forces de Marangoni (effet moteur de la convection) et à l'inverse de la hauteur et de la tension superficielle du fluide.

Considérons maintenant le dispositif suivant : le fluide étudié précédemment repose, non plus sur un solide, mais sur un autre liquide. Lorsque l'on impose sur la surface libre de ce nouveau système des forces de Marangoni, on engendre une convection dans la couche supérieure qui provoque la déformation de la surface libre, et de l'interface liquide-liquide. On amplifie de façon considérable la modulation de cette interface liquide-liquide, si la tension interfaciale, et la différence des masses volumiques entre les deux liquides sont faibles. L'étude de la modulation de l'interface liquide-liquide a été faite dans le chapitre III. Elle montre tout l'intérêt d'utiliser un système bicouche plutôt qu'une monocouche pour détecter un faible échauffement dans le fluide supérieur.

Les conditions précédentes sont réunies si un choix judicieux de liquides est fait. Il y a deux possibilités pour obtenir une tension interfaciale faibl

- les deux liquides ne sont pas ou peu miscibles. La tension interfaciale reste importante (≅ 20 dyne/cm par exemple). Pour la diminuer il est nécessaire d'ajouter des tensio-actifs.

- les deux liquides sont partiellement miscibles. Dans ces conditions la tension interfaciale peut atteindre des valeurs faibles (≤ 1 dyne/cm par exemple). Elle s'annule à la température critique du mélange.

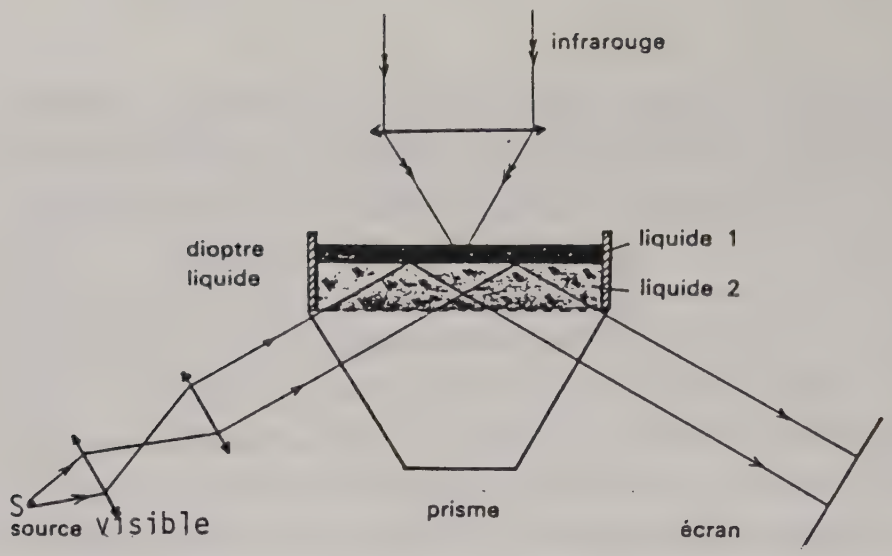
Nous avons retenu le deuxième cas. Il permet d'utiliser des liquides d'indices de réfraction très différents. Une détection optique de l'interface liquide-liquide est plus facile dans ces conditions. Le chapitre IV décrit l'étude expérimentale des propriétés physico-chimiques de deux mélanges, utilisés pour réaliser la couche sensible du convertisseur d'images infrarouges à interface liquide-liquide. Nous avons étudié successivement, le diagramme de coexistence des phases, la viscosité et les tensions superficielles et interfaciales, en fonction de la température, pour :

* le mélange binaire : Bromonaphtalène, huile aux silicones de viscosité 3 cst.

* le mélange ternaire : Bromonaphtalène, huile aux silicones 0,65 cst et Iodonaphtalène.

Le dernier mélange a permis de diminuer d'un facteur 20 environ, la valeur de la tension interfaciale. Le chapitre V s'intéresse aux problèmes de la visualisation des déformations de l'interface liquide-liquide, dans le but de les utiliser pour observer des images infrarouges. Nous décrivons la méthode optique utilisée et nous analysons ses performances. Compte-tenu des inconvénients inhérents à l'usage d'une interface liquide-liquide de grande dimension et de très faible tension interfaciale, une méthode par ombroscopie effectuée par réflexion totale sur l'interface liquide-liquide a été utilisée. L'analyse de la réponse de l'interface liquide-liquide a une perturbation thermique de faible niveau, de fréquence spatiale variable a été faite par diffraction en lumière cohérente. La visualisation de la répartition d'énergie dans les différents ordres diffractés, en fonction du pas de la modulation de l'interface, a permis d'une part de mesurer l'amplitude de la modulation, et d'autre part d'expliquer l'aspect de "l'image" observée par ombroscopie en fonction de la distance de l'écran de visualisation à l'interface.

L'utilisation d'un dispositif composé de deux liquides superposés pour détecter et visualiser une image infrarouge a été réalisée (chapitre VI). Le principe de base est le suivant (figure 1).



- Figure 1 -

On utilise un prisme de verre de haut indice, sur lequel on dépose sur une des faces un mélange de deux liquides mutuellement saturés, en quantité suffisante pour recouvrir tout le prisme. Par démixtion, les deux phases se séparent. On s'arrange, par le choix des liquides (chapitre IV) pour que la solution supérieure soit d'épaisseur très faible et de bas indice de réfraction par rapport à la solution inférieure placée au contact du prisme et de même indice que celui-ci. Il sera possible de la sorte d'avoir une réflexion totale sur l'interface liquide-liquide, pour un large faisceau de lumière visible issue d'une source ponctuelle S.

1) A l'aide d'un objectif infrarouge, on projette le rayonnement émis par l'objet sur la surface libre de la solution supérieure.

2) L'image infrarouge obtenue est transformée en une image thermique par absorption de la solution supérieure du rayonnement. On a donc une répartition bidimensionnelle de température sur la couche sensible, proportionnelle à l'énergie émise par les points conjugués sur l'objet.

3) La modulation plus ou moins importante de l'interface liquide-liquide (chapitre III), selon l'intensité reçue, défléchit plus ou moins la lumière, et conduit directement par ombroscopie (chapitre V) à l'image recherchée. Les images ainsi obtenues, montrent avec une bonne netteté, les différences d'énergie pouvant exister sur la surface de l'objet.

Le chapitre VI décrit l'appareil réalisé avec la SOPELEM [5]. Les résultats obtenus avec les deux mélanges étudiés au chapitre IV sont présentés et analysés. Ils sont comparés avec ceux donnés par le "Pyricon" de la Thomson CSF.

Bibliographie du chapitre I

{1} Voir Bibliographie du chapitre VI

{2} a) A. Hadni "Essentials of Modern Physics applied to the Study of the Infrared" Pergamon Press.

b) "Pyricon" Documentation technique Thomson-CSF.

{3} E. Heintz. Le Journal de Physique - Série 8 - Tome 7 - n° 11 - 1946.

{4} M.G. Velarde - Hydrodynamic Instabilities in isotropic Fluids. 1973 - Les Houches - Summer school pp. 471-527.

{5} SOPELEM - Société d'Optique Précision Electronique et Mécanique 125, Boulevard Davout - 75020 PARIS.

CHAPITRE II

RAPPELS DES EQUATIONS HYDRODYNAMIQUES DECRIVANT LE MOUVEMENT D'UN FLUIDE

I - INTRODUCTION

La description de l'état d'un fluide en mouvement se fait au moyen de fonctions déterminant la distribution de la vitesse du fluide :

$$\vec{v} = \vec{v}(\vec{r},t)$$

et de deux de ses grandeurs thermodynamiques, par exemple la pression :

$$p(\vec{r},t)$$

et la densité :

$$\rho(\vec{r},t)$$

On sait que toutes les grandeurs thermodynamiques sont déterminées d'après les valeurs de deux quelconques d'entre elles par l'équation d'état de la matière. Ceci étant, la donnée de cinq grandeurs : les trois composantes de la vitesse $\vec{v}$, la pression p, et la densité ρ, détermine complètement l'état du fluide en mouvement.

On distinguera deux parties dans ce premier chapitre :

- La première partie ne tient pas compte des forces éventuelles de tension superficielle sur les frontières du fluide, soit parce qu'elles sont très inférieures aux forces en volume, soit parce que les frontières du fluide sont très éloignées du point considéré.
- La seconde partie tient compte,dans le bilan des forces qui gouvernent le mouvement du fluide, des forces en surface ; partout où il y aura une variation affectant la tension superficielle de la frontière et la densité du fluide, les deux types de forces contribueront au mouvement du fluide. On considère ici que les forces en surface sont suffisamment importantes pour que leur contribution ne soit plus négligeable et affecte le mouvement du fluide.Elles peuvent même être les seules forces gouvernantes dans les expériences en apesanteur.

II - RAPPELS DES EQUATIONS HYDRODYNAMIQUES D'UN FLUIDE

A. Fluide parfait

On fait abstraction, pour le moment, des processus de dissipation d'énergie qui peuvent exister dans le fluide en mouvement par suite du frottement interne (viscosité) et de l'échange de chaleur entre ses

.../...

diverses parties. La théorie détaillée, dont on rappelle ici l'essentiel, est exposée dans "Mécanique des Fluides" de L. LANDAU et E. LIFCHITZ {1}.

1. Equation de continuité pour la masse

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \operatorname{div} \vec{J} = 0 \qquad (1)$$

$\vec{J} = \rho\vec{v}$ est l'impulsion de l'unité de volume du fluide ou densité du flux d'impulsion. Elle traduit la conservation de la masse du fluide. Si ρ = Cte (fluide incompressible), en régime stationnaire l'équation (1) s'écrit tout simplement :

$$\operatorname{div} \rho\vec{v} = 0$$

2. Equation d'Euler (1755)

$$\rho \frac{d\vec{v}}{dt} = -\vec{\nabla}p \qquad (2)$$

Elle traduit la loi de Newton appliquée à l'unité de volume du fluide.

L'accélération $\frac{d\vec{v}}{dt}$ représente ici non pas la variation de la vitesse du fluide au point considéré fixe de l'espace, mais la variation de la vitesse d'une particule déterminée se déplaçant dans l'espace. Autrement dit, l'équation d'Euler peut s'exprimer sous la forme suivante :

$$\frac{\partial \rho\vec{v}}{\partial t} + (\vec{v}\cdot\vec{\nabla})\ \rho\vec{v} = -\vec{\nabla}p \qquad (3)$$

En notation tensorielle, l'équation d'Euler s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho v_i = -\frac{\partial}{\partial x_k} \Pi_{ik} \qquad (4)$$

où le tenseur Π_{ik} a pour définition :

$$\Pi_{ik} = p\delta_{ik} + \rho v_i v_k \qquad (5)$$

Les indices i, k, ... correspondent aux composantes de vecteurs et tenseurs sur les axes x,y,z.

Π_{ik} est la $i^{ième}$ composante de l'impulsion passant en l'unité de temps à travers l'unité de surface, perpendiculaire à l'axe x_k.

.../...

Dans le champ de pesanteur, chaque unité de volume est soumise à la force extérieure $\rho\vec{g}$, g étant l'accélération de la pesanteur. On l'ajoute au second membre de l'équation (2), de sorte que (3) devient :

$$\frac{d\rho\vec{v}}{dt} = \frac{\partial\rho\vec{v}}{\partial t} + (\vec{v}\cdot\vec{\nabla})\ \rho\vec{v} = -\ \vec{\nabla}p + \rho\vec{g} \qquad (6)$$

3. Deuxième principe de la thermodynamique

L'absence d'échange de chaleur entre les différentes régions du fluide signifie que le mouvement est adiabatique. En désignant par s l'entropie rapportée à l'unité de masse du fluide, on peut exprimer l'adiabaticité du mouvement en l'absence de sources par l'équation :

$$\frac{ds}{dt} = 0 \qquad (7)$$

Cette dérivée peut s'écrire, comme pour la vitesse $\vec{v}$:

$$\frac{\partial s}{\partial t} + \vec{v}\cdot\vec{\text{grad}}\ s = 0 \qquad (8)$$

Eu égard à l'équation (1), on peut l'écrire sous la forme "d'équation de continuité" pour l'entropie :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho s) + \text{div}(\rho s\vec{v}) = 0 \qquad (9)$$

Le produit $\rho s\vec{v}$ représente la "densité du flux d'entropie".

Telles sont les équations décrivant le mouvement d'un fluide parfait.

4. Existence d'un seuil sur le gradient thermique vertical pour avoir une convection libre

Un fluide peut être en équilibre mécanique sans se trouver pour autant en équilibre thermique. En effet, l'équation d'Euler (2), qui est la condition d'équilibre mécanique pour un fluide parfait dans le champ de pesanteur, peut aussi être satisfaite lorsque la température dans le fluide n'est pas constante. Il résulte de l'équation (2) que la densité ρ n'est, elle aussi, fonction que de z, si p ne dépend que de cette coordonnée :

$$\rho = -\ \frac{1}{g}\frac{dp}{dz} \qquad (10)$$

.../...

Comme la pression et la densité déterminent univoquement la température au point donné du fluide, il s'ensuit que la température doit être de même fonction de z aussi. Il se pose alors la question de la stabilité d'un tel équilibre : il apparaît que l'équilibre n'est stable que moyennant une certaine condition. Si cette condition n'est pas remplie, l'équilibre est instable, et des courants prennent naissance dans le fluide, qui ont tendance à le brasser de façon qu'il s'y établisse une température constante.

Un calcul simple {1} montre qu'il y aura convection si le gradient thermique vertical est supérieur à :

$$\frac{dT}{dz} > - rgT/c_p \qquad (11)$$

avec $r = \frac{1}{V}(\frac{\partial V}{\partial T})_p$ le coefficient de dilatation volumique, et c_p la chaleur spécifique à pression constante du fluide parfait.

Il y aura mouvement convectif si la température décroît de bas en haut, et si son gradient est supérieur en valeur absolue à $\frac{rgT}{c_p}$.

Exemples

S'il s'agit de l'équilibre d'unecolonne de gaz, supposé parfait, on a $r = \frac{1}{T}$, et la condition d'équilibre stable est simplement :

$$\frac{dT}{dz} > - \frac{g}{c_p}$$

• Dans le cas de l'air, $c_p = 0{,}25$ cal.g^{-1} °C^{-1}

$$\left|\frac{dT}{dz}\right| > 10^{-2}\ °Cm^{-1}$$

• Dans le cas d'une huile aux silicones, $r = 10^{-3}°C^{-1}$; $c_p = 0{,}35$cal.g^{-1} °C^{-1} à T = 300°K, on a :

$$\left|\frac{dT}{dz}\right| \geq 9°Cm^{-1}$$

Ainsi donc, une colonne d'huile, supposée sans viscosité, de 1 mm de hauteur, convecterait si la différence de température entre le haut et le bas dépasse le centième de degré. Il faut s'attendre à ce que, dans le cas d'un fluide réel, le seuil thermique soit plus élevé, pour vaincre les forces de frottement interne du fluide.

.../...

5. Conclusion

Lorsqu'il y a équilibre mécanique dans un champ de pesanteur, la distribution de la pression, de la densité et de la température dans le fluide ne dépend que de l'altitude. Il existe un *seuil thermique vertical* pour mettre hors équilibre le fluide.

Mais si la température est différente en différents points du fluide, à une même altitude, l'équilibre mécanique y est impossible. Il n'existe pas de seuil sur le gradient thermique horizontal pour avoir un mouvement convectif dans un fluide réel. On retrouve cette propriété en présence d'une interface : il n'y a pas *de seuil thermique dans l'effet Marangoni* {2} : La moindre inhomogénéité en température ou en composition sur l'interface se traduit par une convection qui engendre, comme nous le verrons plus loin, en plus une déformation de l'interface {3}.

B. Fluide visqueux

1. Le tenseur des contraintes visqueuses

On tient compte maintenant de l'influence qu'exercent, sur le mouvement d'un fluide, les processus de dissipation d'énergie. Ces processus sont la manifestation de l'irréversibilité thermodynamique du mouvement due au frottement interne (viscosité) et à la thermoconduction.

Pour exprimer les équations décrivant le mouvement d'un fluide visqueux, il est nécessaire d'introduire de nouveaux termes dans l'équation d'Euler {1} :

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho v_i = - \frac{\partial}{\partial x_k} \Pi'_{ik} \qquad (12)$$

où le tenseur Π'_{ik} a pour définition :

$$\Pi'_{ik} = p\delta_{ik} + \rho v_i v_k - \sigma'_{ik} = \rho v_i v_k - \sigma_{ik} \qquad (13)$$

L'équation d'un fluide visqueux en mouvement peut être obtenue en ajoutant au flux d'impulsion "parfait" (éq.5) un terme σ'_{ik} caractérisant le transport "visqueux" irréversible d'impulsion dans le fluide.

Le tenseur $\sigma_{ik} = - p\delta_{ik} + \sigma'_{ik}$ est appelé tenseur des contraintes et σ'_{ik} tenseur "visqueux" des contraintes. Il a l'expression suivante pour

.../...

un fluide incompressible :

$$\sigma_{ik} = - p\delta_{ik} + \eta\left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i}\right) \qquad (14)$$

2. Equation de Navier-Stokes

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho\vec{v} + (\vec{v}\cdot\vec{\nabla})\,\rho\vec{v} = -\vec{\nabla}p + \rho\vec{g} + \eta\Delta\vec{v} + (\zeta + \eta/3)\,\vec{\nabla}\cdot\mathrm{div}\,\vec{v} \qquad (15)$$

Les quantités η et ζ sont les coefficients de viscosité ; ils sont tous les deux positifs. Dans le cas général, p, T, et donc η et ζ ne sont pas constants dans le fluide. Néanmoins, dans la plupart des cas, la variation des coefficients de viscosité dans le fluide est négligeable, si bien qu'ils peuvent être considérés comme constants. Si le fluide est supposé incompressible, $\mathrm{div}\,\vec{v} = 0$, et le dernier terme du second membre dans (15) disparaît. L'équation du mouvement d'un fluide visqueux incompressible s'écrit, par conséquent :

$$\frac{d\vec{v}}{dt} = \frac{\partial\vec{v}}{\partial t} + (\vec{v}\cdot\vec{\nabla})\,\vec{v} = -\frac{1}{\rho}\vec{\nabla}p + \vec{g} + \nu\Delta\vec{v} \qquad (16)$$

Dans un fluide incompressible, la viscosité est décrite par un seul coefficient. Le rapport $\nu = \eta/\rho$ est la viscosité cinématique, le coefficient η étant la viscosité dynamique.

Voici quelques valeurs de η et de ν pour quelques fluides usuels à 20°C en unité cgs :

TABLEAU I

Fluides	η (g/s.cm)	ν (cm²/s)
Eau	0,010	0,010
Air	$1{,}810^{-4}$	0,150
Alcool	0,018	0,022
Glycérine	8,5	6,8
Mercure	0,0156	0,0012

d'après L. LANDAU et E. LIFCHITZ {1}.

.../...

3. Conservation de l'énergie

L'énergie cinétique de l'unité de volume d'un fluide est $e_c = \frac{1}{2} \rho v^2$. En calculant la dérivée $\frac{\partial}{\partial t} \frac{1}{2} \rho v^2$, et en utilisant les équations (12) et (13), on obtient, pour l'unité de volume du fluide incompressible, l'expression :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{2} \rho v^2\right) = - \operatorname{div} \left[\vec{v}\left(\frac{\rho v^2}{2} + p\right) - \left(\vec{v}\,\overline{\overline{\sigma'}}\right)\right] - \overline{\overline{\sigma'}}_{ik} \frac{\partial v_i}{\partial x_k} \qquad (17)$$

En intégrant dans un volume V, délimité par la surface fermée S, on obtient l'évolution de l'énergie cinétique de ce volume :

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{\rho v^2}{2} \, dV = - \int_S \left[\vec{v}\left(\frac{1}{2} \rho v^2 + p\right) - \vec{v}\,\overline{\overline{\sigma'}}\right] dS - \int_V \sigma'_{ik} \frac{\partial v_i}{\partial x_k} \, dV \qquad (18)$$

- le facteur $\vec{v}\left(\frac{1}{2} \rho v^2 + p\right)$ est le flux d'énergie lié au transport de la masse du fluide en mouvement, et coincide avec le flux d'énergie dans un fluide parfait ;
- le second facteur $\left(\vec{v}\,\overline{\overline{\sigma'}}\right)$ de l'intégrale de surface désigne un facteur de composantes $v_i \sigma'_{ik}$; il représente le flux d'énergie lié aux processus de frottement interne. Le premier terme du second membre représente donc la variation de l'énergie du fluide dans le volume, du fait de la présence d'un flux d'énergie à travers la surface S du volume V.

Par conséquent, le second terme du deuxième membre représente la diminution de l'énergie cinétique, par suite de la dissipation, qui est de la chaleur en général.

C. Les conditions aux limites

Il est nécessaire d'associer aux équations du mouvement des conditions aux limites qui doivent être vérifiées sur les parois limitant le fluide convectant.

1. Fluide parfait

a) Paroi solide

La condition est simple : elle traduit le fait que le fluide ne peut passer au travers de la paroi solide. Cela signifie que la composante de la vitesse normale à la paroi doit s'annuler sur les parois fixes :

$$v_N = 0 \qquad (19)$$

.../...

Dans le cas général d'une paroi mobile, $\vec{v}$ doit être égale à la composante correspondante de la vitesse de la paroi.

b) Interface fluide-fluide plane

A la surface de séparation de deux fluides, les conditions d'égalité des pressions et des composantes normales de la vitesse des deux fluides doivent être vérifiées.

2. Fluide visqueux

a) Paroi solide

Entre la surface d'un corps solide et un fluide réel, il existe toujours des forces de cohésion moléculaire dont l'effet est que la couche à même la paroi du corps y est retenue, comme si elle y était collée. Ceci étant, les conditions aux limites des équations du mouvement d'un fluide visqueux consistent à annuler la vitesse du fluide, sur les parois solides fixes:

$$\vec{v} = 0 \qquad (20)$$

Dans le cas général d'une surface mobile, $\vec{v}$ doit être égale à la vitesse de cette surface.

b) Expression de la force agissant sur une paroi solide fixe par un fluide visqueux en mouvement (ou l'inverse)

La force agissant sur un élément de surface est égale au flux d'impulsion à travers cet élément. Le flux d'impulsion à travers l'élément de surface $\vec{ds}$ est :

$$\Pi'_{ik}\, df_k = (\rho v_i v_k - \sigma_{ik})\, df_k \qquad (21)$$

On trouve, pour la force $\vec{P}$ agissant sur l'unité d'aire de la surface :

$$P_i = -\sigma_{ik} n_k = p n_i - \sigma'_{ik} n_k \qquad (22)$$

sachant que $\vec{v} = 0$ sur la surface solide, et que $\vec{n}$ est le vecteur unité de la normale à la surface, extérieure par rapport au fluide.

Le premier terme est la pression usuelle du fluide, et le second représente la force de frottement de viscosité agissant sur la surface.

.../...

c) Interface fluide-fluide plane

A la surface de séparation de deux fluides 1 et 2, les conditions aux limites sont :

- les vitesses des deux fluides sont égales :

$$\vec{v}_1 = \vec{v}_2 \tag{23}$$

- les forces avec lesquelles ils agissent l'un sur l'autre sont de même grandeur et de sens contraire :

$$n_k^{(1)}\sigma_{ik}^{(1)} + n_k^{(2)}\sigma_{ik}^{(2)} = 0 \tag{24}$$

Les normales $\vec{n}^{(1)}$ et $\vec{n}^{(2)}$ étant opposées, on a $n_k^{(1)} = -n_k^{(2)} = n_k$, de sorte que la condition sur les forces sur l'interface s'écrit :

$$n_k\sigma_{ik}^{(1)} = n_k\sigma_{ik}^{(2)} \tag{25}$$

Dans le cas particulier d'un fluide en contact avec un gaz (surface libre), la condition à vérifier est la suivante :

$$\sigma_{ik}n_k = \sigma'_{ik}n_k - pn_i = 0 \tag{26}$$

En présence d'une pression statique uniforme extérieure, la pression atmosphérique par exemple, on a :

$$\sigma_{ik}n_k = \sigma'_{ik}n_k - pn_i = p_{atm.} \tag{27}$$

III - INFLUENCE DES FORCES DE TENSION SUPERFICIELLE EN PRESENCE D'UNE INTERFACE FLUIDE-FLUIDE

1. Forces en volume - Forces en surface

On s'intéresse ici aux phénomènes se déroulant au voisinage d'une interface, séparant deux milieux continus, en tenant compte des propriétés de la tension superficielle de la surface de séparation.

La présence de ces forces en surface, dont on n'a pas tenu compte jusqu'à maintenant, peuvent considérablement modifier les phénomènes de convection libre dans un fluide. Il suffit pour s'en convaincre de consulter les

.../...

travaux consacrés aux instabilités de Bénard-Marangoni {4} pour s'apercevoir du rôle essentiel joué par les forces capillaires dans les instabilités convectives en présence d'une surface libre.

En général, la convection libre dans un fluide peut être induite soit par des forces en volume en l'absence d'interface, soit par des forces en surface s'il y a interface, ou les deux à la fois (voir Tableau II).

La phénoménologie de la convection tenant compte des forces en surface peut être complexe pour plusieurs raisons qui sont :

- les champs de vitesse, de température et de composition sont liés à cause de nouvelles conditions aux limites (Eq. 29) ;
- partout où il y a une variation d'une propriété affectant la tension superficielle α d'une interface et la densité ρ du fluide, les deux types de forces sont présents pour gouverner le mouvement du fluide ;
- l'importance respective des forces en volume (force d'Archimède, de gravité ...) et en surface (force de Marangoni) est relative et dépend des conditions dans lesquelles est placé le fluide (voir paragraphe III, chapitre III)

2. Forces de Marangoni - Flux de Marangoni

Nous avons considéré, pour décrire le mouvement d'un fluide, des forces extérieures, comme la pesanteur $\rho\vec{g}$, et, dans le cas où la pression n'est pas uniforme, des forces en volume $-\vec{\nabla}p$ et des forces visqueuses $\eta\Delta\vec{v}$, si le fluide n'est pas parfait. En présence d'une interface, il est nécessaire d'introduire dans les équations hydrodynamiques, par les conditions aux limites, des forces supplémentaires de surface que l'on peut classer en deux catégories :

- La première agit normalement à l'interface et dépend de la courbure moyenne de celle-ci (Figure 1.A). Elle contrebalance la force d'Archimède en hydrostatique, agissant sur le volume adjacent à l'interface. Nous verrons plus loin qu'elle a pour effet de modifier la forme de l'interface, donc sa courbure.
- La seconde agit tangentiellement à l'interface (Figure 1.B). On sait en effet que lorsque l'interface est caractérisée par une tension superficielle qui n'est pas infinie, celle-ci dépend de façon extrêmement critique de la composition et de la température de l'interface (voir Chapitre IV : Tensions superficielles et interfaciales d'un système diphasique). Ces gradients éventuels engendrent des forces de tension superficielle ou

.../...

TABLEAU II

Type de convection	Force gouvernante
Convection naturelle	Force en volume
Convection de Marangoni	Force en surface
Convection mixte	Force en volume et surface

Forces en volume (par unité de volume)

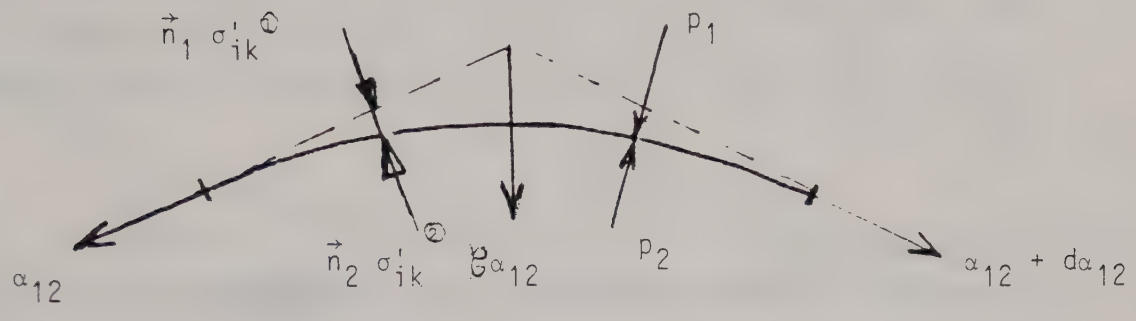
- $\rho\vec{g}$ pesanteur
- $-\vec{\nabla}p$ force de pression
- $n\Delta\vec{v}$ force visqueuse

Forces en surface (par unité de surface)

- $\wp\,\alpha_{12}\vec{n}$ force normale
- $\vec{\nabla}\alpha_{12}$ force tangentielle

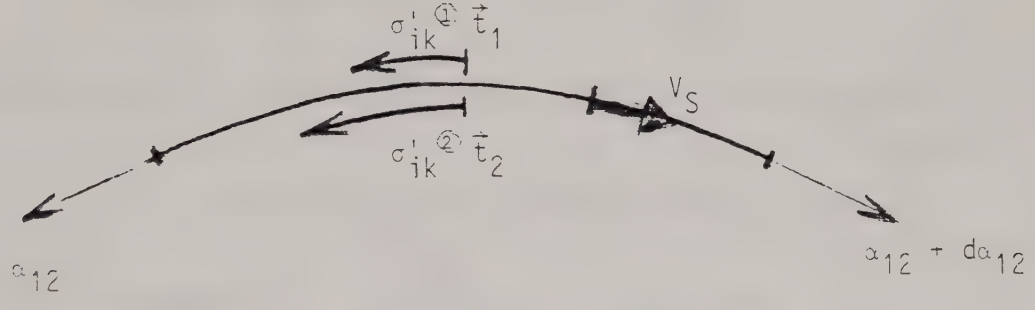
Figure 1

Forces par unité de surface agissant sur
la frontière séparant deux fluides



A) composante normale de la force par unité de surface

$$\vec{F}_N = \alpha_{12} \mathcal{G} \vec{n}_{12} = -\alpha_{12} \mathcal{G} \vec{n}$$



B) composante tangentielle $\vec{F}_t = \vec{\text{grad}}\ \alpha_{12}$ de la force par unité de surface

α_{12} tension superficielle
p pression
$\vec{n}\sigma'_{ik}$ contrainte visqueuse normale
$\vec{t}\,\sigma'_{ik}$ contrainte visqueuse tangentielle
$\mathcal{G}$ courbure moyenne de l'interface
V_S vitesse des fluides sur l'interface
$\vec{n}$ normale orientée du fluide 2 vers le fluide 1
$\vec{t}$ tangente à l'interface

"forces de Marangoni" sur l'interface {5,6,7} qui, par des contraintes visqueuses, induisent un mouvement convectif dans le volume adjacent, appelé aussi "flux de Marangoni" (Figure 2).

3. Les conditions aux limites en présence de forces de Marangoni

La frontière entre deux fluides 1 et 2 en mouvement est une interface libre, c'est-à-dire caractérisée par une tension superficielle α non infinie. Si l'on ignore les forces de tension superficielle, nous avons à la frontière des deux fluides, la condition aux limites décrite par l'équation (25) :

$$n_k(\sigma_{ik}^{(2)} - \sigma_{ik}^{(1)}) = 0$$

Elle exprime l'égalité des forces de frottement de viscosité agissant sur la surface des deux fluides. Si on tient compte de la tension superficielle il est nécessaire d'ajouter à l'équation (25) une force supplémentaire dont la grandeur est déterminée par la relation de Laplace et qui est normale à la surface :

$$n_k\sigma_{ik}^{(2)} - n_k\sigma_{ik}^{(1)} = \alpha_{12}\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right)n_i \qquad (28)$$

R_1 et R_2 sont les rayons de courbure principaux au point donné de la surface (Figure 3).

L'équation précédente peut encore s'écrire :

$$(p_1 - p_2)\, n_i = (\sigma'^{(1)}_{ik} - \sigma'^{(2)}_{ik})\, n_k + \alpha_{12}\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right)n_i \qquad (29)$$

Si les deux fluides sont parfaits, les contraintes visqueuses σ'_{ik} disparaissent, et on retrouve la loi de Laplace (28).

On tient compte, maintenant, de l'inconstance de la température sur l'interface. Alors, en même temps que la force normale (disparaissant dans le cas d'une surface plane), il apparaît concurremment une force supplémentaire dirigée tangentiellement à la surface (Figures 1 et 2).

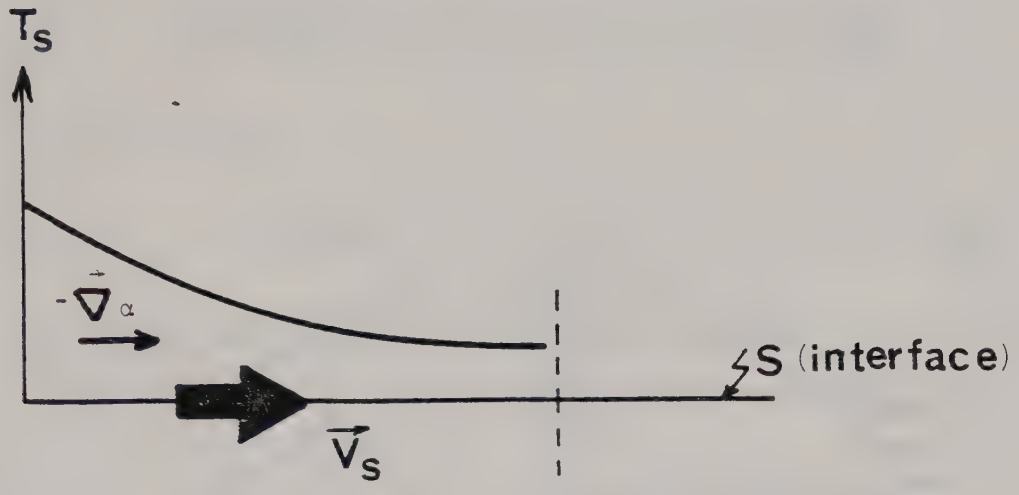
De même que dans le cas où la pression n'est pas uniforme, il apparaît une force volumique égale, par unité de volume, à $-\vec{\nabla}p$, on a, pour la force tangentielle agissant sur l'unité d'aire de l'interface, une force égale à $\vec{\nabla}\alpha$. Le gradient est affecté ici du même signe que la force en volume $-\vec{\nabla}p$,

.../...

FIGURE 2

Représentation schématique d'une convection de Marangoni d'origine thermique

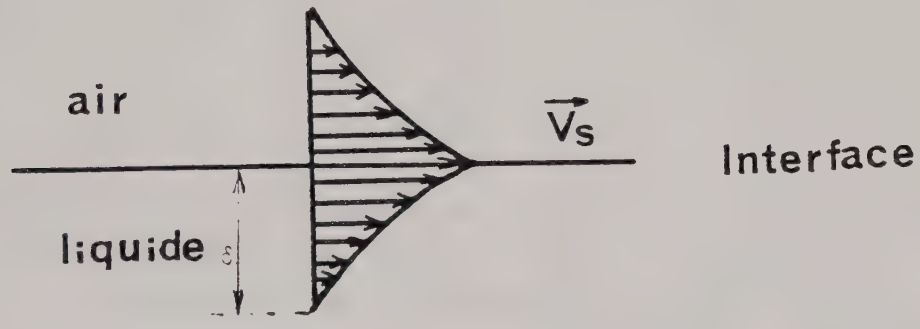
d'après L.G. NAPOLITANO {8}.



1. Flux de Marangoni

T_S : température de l'interface

V_S : vitesse du fluide sur l'interface $\left(\frac{d\alpha}{dT} < 0\right)$



2. Distribution de la vitesse

$V_S = \frac{|\delta\alpha|}{\eta}$: vitesse de Marangoni sur l'interface.

Profondeur de pénétration : $\delta \sim \frac{L}{(V_S L/\nu)^{1/3}}$.

L : longueur caractéristique dans la direction du flux (épaisseur du fluide dans la convection de Bénard)

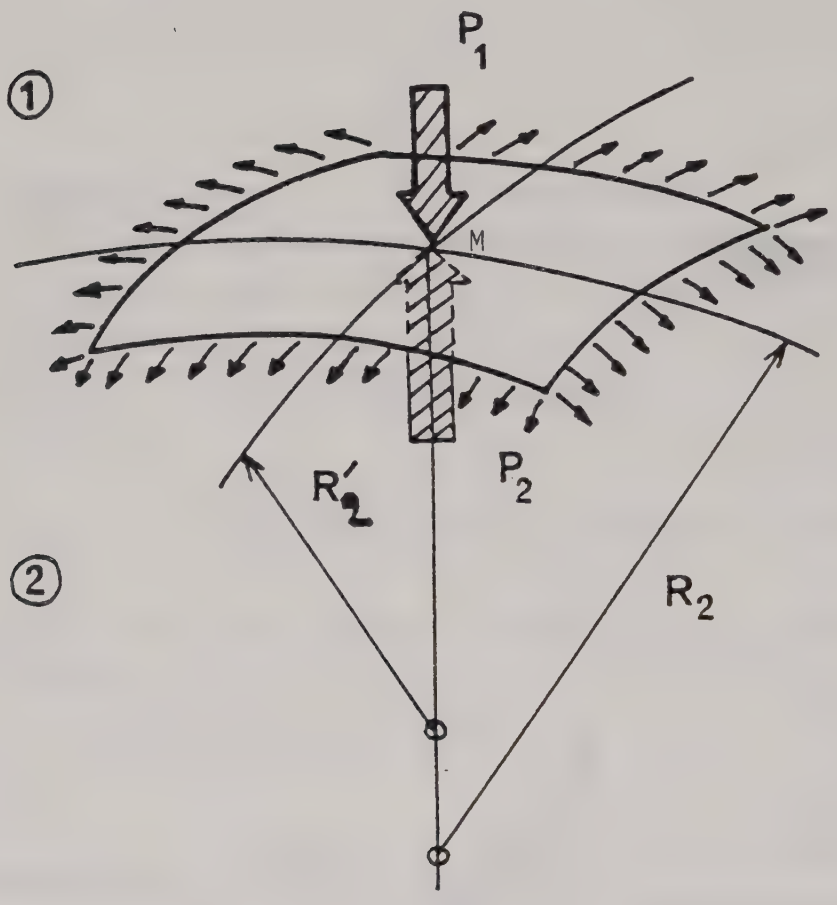
$Re = V_S L/\nu$: nombre de Reynolds.

ν : viscosité cinématique. ($cm^2\ s^{-1}$)

FIGURE 3

Equilibre hydrostatique d'un élément d'interface

Formule de Laplace : $p_2 - p_1 = \alpha_{12}(\frac{1}{R'_2} + \frac{1}{R_2})$



* $(p_2 - p_1)$ est la différence de pression ou pression superficielle au voisinage de la surface de séparation des deux milieux.
* α_{12} est la tension superficielle de l'interface
* R_2 et R'_2, les rayons de courbure principaux en M, de la surface de séparation. Ils sont comptés positifs lorsque la concavité de la surface est dirigée du milieu 1 vers le milieu 2.

Dans le cas de la figure, la pression dans le milieu 2 est supérieure à la pression dans le milieu 1.

Cas particulier 1) $R'_2 = R_2 = \infty$ → la surface de séparation est plane. Les pressions p_1 et p_2 sont égales.

2) $R'_2 = R_2 = R$ → la surface de séparation est une sphère

$$p_2 - p_1 = \frac{2\alpha_{12}}{R} = 2\beta\alpha_{12}$$

parce que les forces de tension superficielle tendent à réduire l'aire de la surface, alors que les forces de pression tendent à augmenter le volume du fluide. On ajoute cette force au second membre de l'équation (28):

$$n_k \sigma_{ik}^{(2)} - n_k \sigma_{ik}^{(1)} = \alpha_{12}\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right) n_i + \frac{\partial \alpha_{12}}{\partial x_i} \qquad (30)$$

ou bien encore :

$$\left[p_1 - p_2 - \alpha_{12}\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right)\right] n_i + \left(\sigma'^{(1)}_{ik} - \sigma'^{(2)}_{ik}\right) n_k + \frac{\partial \alpha_{12}}{\partial x_i} \qquad (31)$$

Le vecteur normal $\vec{n}$ est dirigé vers le premier milieu. L'équation (31) n'est valable que pour un fluide visqueux.

.../...

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II

{1} L. LANDAU et E. LIFCHITZ - "Mécanique des Fluides", Editions M.I.R. Moscou (1971).

{2} C. MARANGONI - Nuovo Cimento (2), 5-6, 239 (1871)
Nuovo Cimento (3), 3-9, 193 (1878)

{3} C. NORMAND, Y. POMEAU, M.G. VELARDE - "Convective Instability : a Physicist Approach". Reviews of Modern Physics, vol. 49, N° 3, July 1977.

{4} M.G. VELARDE - Dans "Fluid Dynamics", Edité par R. Balian et J.L. Peube, Gordon and Breach, New-York (1976), pages 522 à 525.

{5} D.A. NIELD - "Surface tension and buoyancy effects in cellular convection" J. Fluid Mech. 19, 341 (1964).

{6} E. GUYON, J. PANTALONI - "Effet de tension superficielle sur la convection de Rayleigh-Bénard", C.R.A.S. t. 290, 31 Mars (1980).

{7} H. LINDE - Z. Physik and Chem. 224, 72, (1964).

{8} L.G. NAPOLITANO - Acta Astronautica, Vol 8, n°5-6, pp. 417-434 (1981)

CHAPITRE III

ETUDE DE LA REPONSE DES INTERFACES D'UN FLUIDE CONVECTANT SOUS L'ACTION DE FORCES DE MARANGONI ET D'ARCHIMEDE

I - INTRODUCTION

Un trait caractéristique de la convection d'un fluide en présence de forces de Marangoni est qu'elle modifie le profil de l'interface. Diverses expériences ont montré ce phénomène, que l'origine de l'effet Marangoni soit thermique comme les instabilités de BENARD {1} et les expériences de E. HEIN {2}, ou chimique comme dans les expériences de H. LINDE {3} ou tout simplement de C. MARANGONI {4}. Souvent les deux phénomènes coexistent et contrôlent ainsi la fabrication de couches de peinture {5}, la préparation des émulsions photographiques {6 } et la formation des cristaux { 7 }. Une excellente bibliographie,concernant surtout les effets Marangoni d'origine chimique, est donnée par l'article de L.E.SCRIVEN et C.V. STERNLING dans "Nature" { 8 }. Nous allons, avant d'étudier l'équilibre mécanique de la surface d'un fluide mince convectant, rappeler les observations faites par les auteurs cités précédemment sur le comportement des interfaces dans leurs expériences.

II - RAPPELS DES EXPERIENCES GOUVERNEES PAR L'EFFET MARANGONI

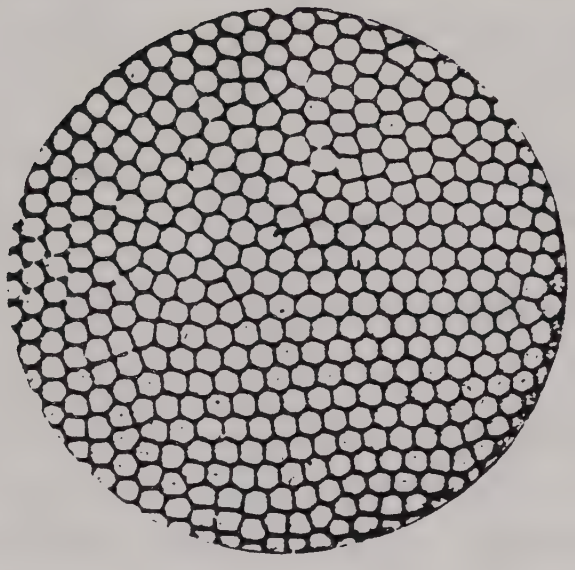
1. Instabilité de BENARD - 1900 -

On chauffe uniformément une couche fine d'un fluide, par l'intermédiaire d'une plaque de cuivre épaisse chauffée et maintenue à une température uniforme. La surface supérieure est libre et se trouve en contact avec l'air. La température inférieure de la couche est supérieure à celle de la surface libre. Lorsque la différence de température ΔT entre les deux parois de la couche fluide atteint un certain seuil, le liquide se met à convecter en acquérant une structure périodique (Figures 1 et 2). On rend la circulation du fluide visible en injectant dans le fluide des grains de poudre de lycopode de 20µm de diamètre. Les cellules de BENARD peuvent être induites en les chauffant par dessus aussi bien que par en-dessous, et par un chauffage horizontal si la couche fluide est suffisamment mince pour tenir verticalement { 9 }. Parallèlement à cela, BENARD dit que *la tension superficielle, à elle seule, provoque déjà une dépression au centre des cellules et un excès de pression sur les lignes de faîte qui séparent les cuvettes concaves les unes des autres* (extrait de la thèse de BENARD en 1901 { 1 }). Un exemple du profil que prend la surface libre dans l'expérience de BENARD est donné par la figure 3 . Les cellules hexagonales sont concaves et sont divisées par des arêtes dont la hauteur se trouve à environ 1,7µm au-dessus du centre des cellules, pour une couche de blanc de baleine de 1,2 mm

.../...

FIGURE 1

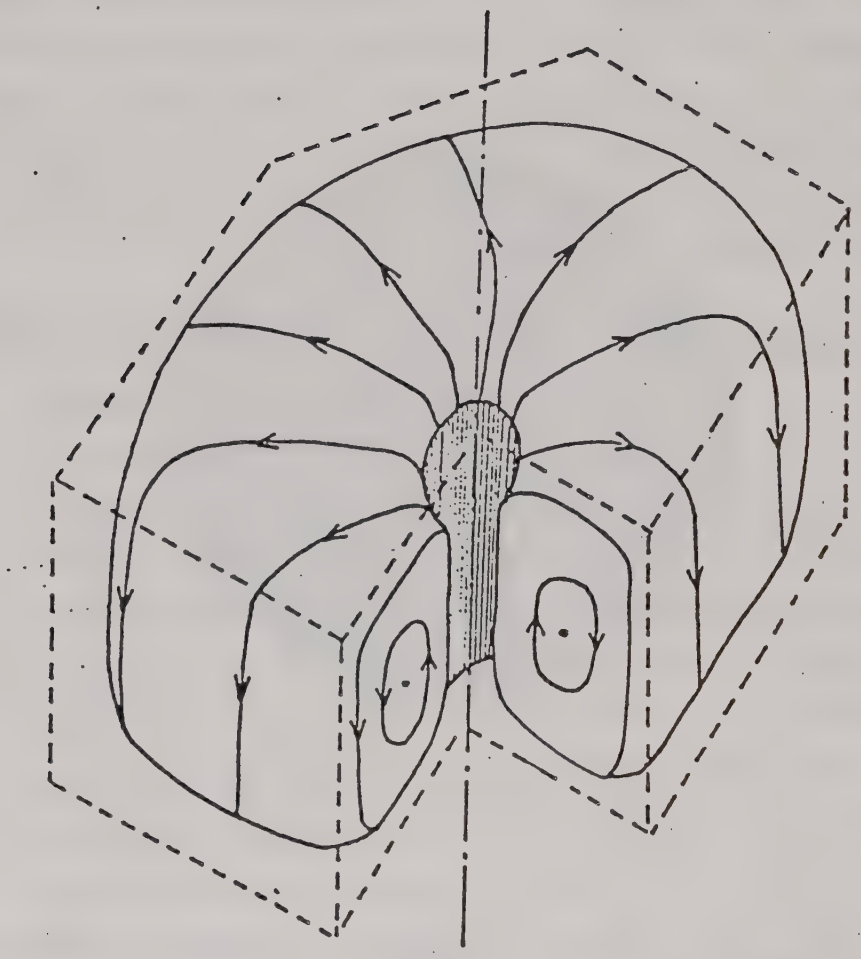
Reproduction d'une photographie originale de BENARD



Vue de dessus des cellules hexagonales dans du blanc de baleine (spermaceti).

FIGURE 2

Détails d'une cellule convectante dans l'instabilité de BENARD



Le fluide chaud issu du bas de la couche monte au centre de la cellule. Le fluide s'écoule ensuite en surface puis, redescend par les bords de la cellule.

chauffée sous une différence de température verticale de 100°C. Le gradient de température sur la surface entre le bord et le centre des cellules est de l'ordre de 1°C {10}. En 1939, HERSHEY {11} a établi une formule donnant la valeur de la dénivellation de la surface entre le centre et le bord des hexagones : (figure 3)

$$\Delta h = \frac{3}{\rho g h} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial T}\right) \delta T_{\text{superficielle}}$$

Le calcul effectué donne Δh = 1,58 µm pour une couche de blanc de baleine chauffé à 100°C, avec une épaisseur de 1,20 mm. Ce résultat est en bon accord avec les mesures de BENARD, sauf que la dépendance de l'épaisseur de la couche convectante a été trouvée à l'inverse des mesures effectuées. Au centre des cellules, là où le fluide monte, la surface est en dépression. Au bord de la cellule, là où le fluide descend, la surface est sur-élevée. Les forces de gravité s'opposent à la formation de fronces, et les forces de tension superficielle s'opposent à l'augmentation de la surface libre. L'énergie minimale pour la surface libre dans le champ de pesanteur est acquise pour une surface plane. On voit donc que l'intéraction entre la gravité et la tension superficielle est subtile et complexe tout à la fois.

2. Expérience de HEINTZ - 1945 -

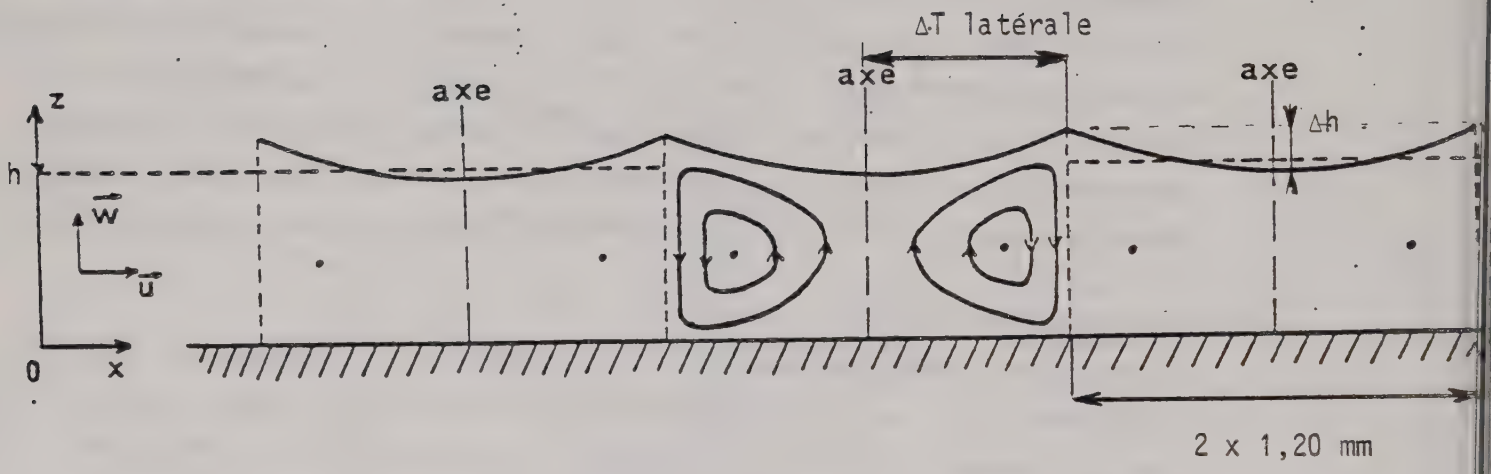
Lorsqu'on irradie une partie d'un liquide avec une longueur d'onde correspondant à une bande d'absorption du liquide, cette partie irradiée s'échauffe, devient plus légère et monte à la surface. Il se forme ainsi dans le liquide une convection locale que l'on peut espérer rendre visible en mettant en suspension dans le liquide des petites particules de substance. E. HEINTZ{ 2 }.

On verse, dans une cuve en verre de 50 mm de diamètre à fond plat, une suspension d'alcool amylique et de poudre d'aluminium. On peut ainsi obtenir une couche de quelques centaines de microns d'épaisseur. On focalise avec une lentille le rayonnement d'une source dont une partie du spectre est absorbée par la suspension. Pour observer ce qui se passe dans le fluide, on l'éclaire par la tranche avec une lumière blanche diffuse. On observe (Figure 4) des tourbillons aussi longtemps que dure l'irradiation du fluide. La vitesse des particules d'aluminium est grande au-dessus du point de focalisation, pour aller ensuite en diminuant lorsqu'elles descendent vers le fond du fluide, pour être augmentée lorsqu'elles remontent vers le point de focalisation, où le jeu recommence. La convection du

FIGURE 3

Vue exagérée de la déformation de la surface libre provoquée par les cellules convectantes.

Description originale de BENARD

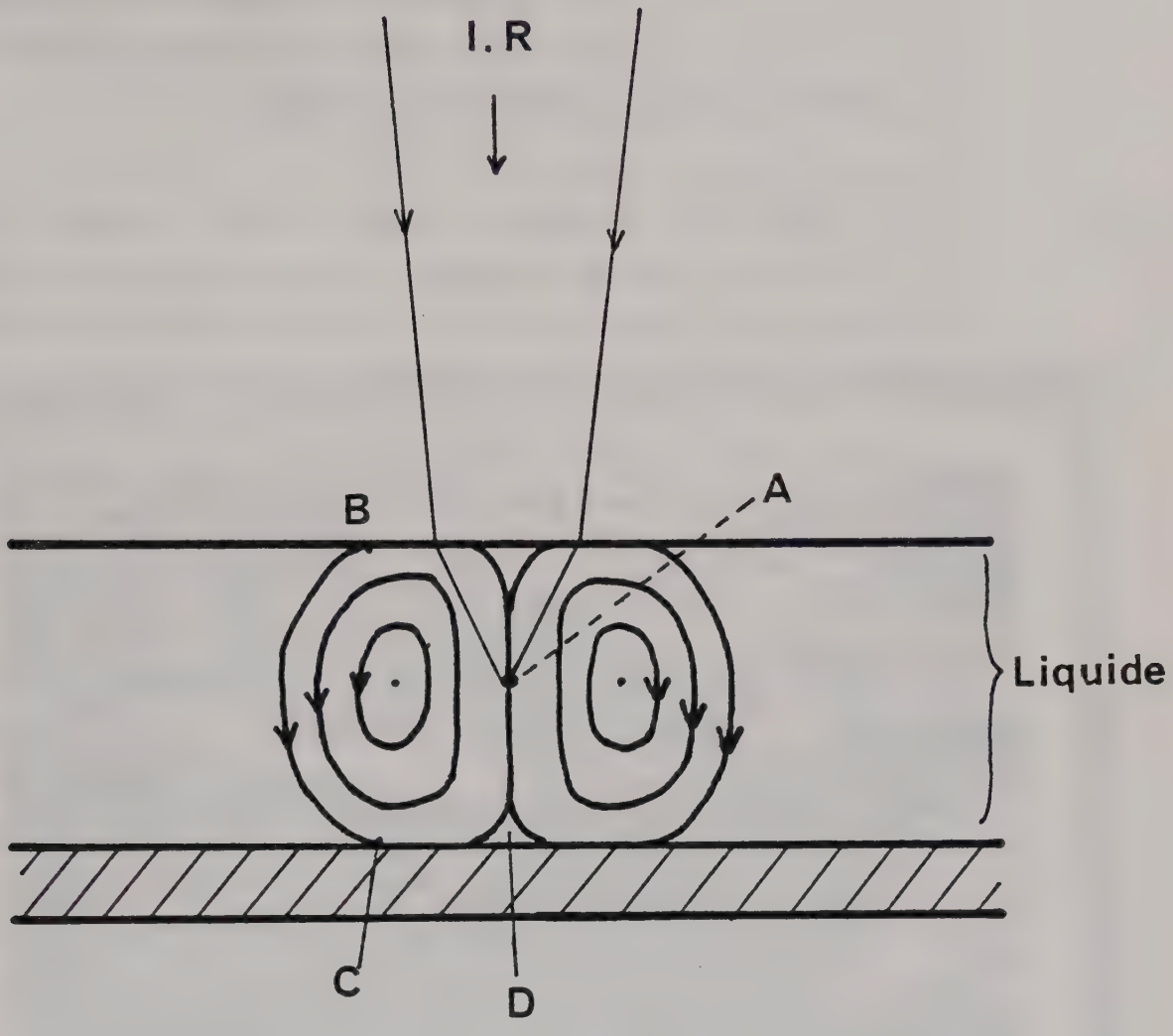


- Blanc de baleine -

ΔT verticale = 100 °C
ΔT latérale = 1°C
h = 1,20 mm
Δh = 1,58 µm

FIGURE 4

Dessin original de E. HEINTZ



On observe les tourbillons dans le liquide en y injectant des particules d'aluminium. La vitesse des particules est grande au-dessus de A. Elle se ralentit ensuite de B vers C, pour croître de nouveau après D lorsqu'elles remontent vers A, où le cycle recommence. La déformation de la surface libre, à la verticale du point A, n'a pas été représentée sur le dessin.

fluide induit un changement de forme de la surface libre que l'on peut facilement visualiser, par réflexion d'une lumière parallèle éclairant la surface supérieure de la suspension. On observe une dépression à la verticale du point de focalisation dont les caractéristiques sont les suivantes :

- la déformation est concave ;
- la profondeur de la déformation est d'environ 2 µm pour une couche d'alcool amylique de 300 µm d'épaisseur, irradiée par un éclairement de 10^{-4} Wc
- la déformation s'étend sur 5 mm, ce qui donne une pente moyenne d'environ 3'.

On constate, dans ces conditions, que la modulation de la surface libre par effet Marangoni donne une amplitude de modulation importante (4 fois la longueur d'onde d'éclairage) pour un faible flux irradiant. Sachant que l'amplitude de la déformation est une fonction inverse de l'épaisseur de la couche {2}, on pourrait détecter une puissance minimale (NEP) de $\cong 10^{-9}$ Watt, valeur comparable à celle d'une cellule de Golay ou d'un bolomètre. Quant à la déformation de la surface libre, on constate qu'elle est large et à pente faible(3'). Il sera donc difficile d'obtenir à priori une bonne résolution par ce procédé, sauf si on peut diminuer l'épaisseur de la couche convectante. En effet, la période de la déformation de la surface libre d'une couche mince convectante, d'épaisseur h, est égale à $\Lambda \cong 2h$ {12}. Λ est la longueur d'onde de la modulation périodique correspondant à des rouleaux "circulaires", c'est-à-dire à des rouleaux dont l'extension horizontale est égale à l'épaisseur de la couche.

En conclusion, on peut dire que la réponse d'une interface par effet Marangoni du type thermique est un phénomène extrêmement sensible à la chaleur. Il a cependant un défaut : il n'est pas commode à manipuler, sauf pour des couches très minces qui tiendraient par capillarité, mais qui ne sont pas faciles à réaliser avec une épaisseur homogène sur une grande surface.

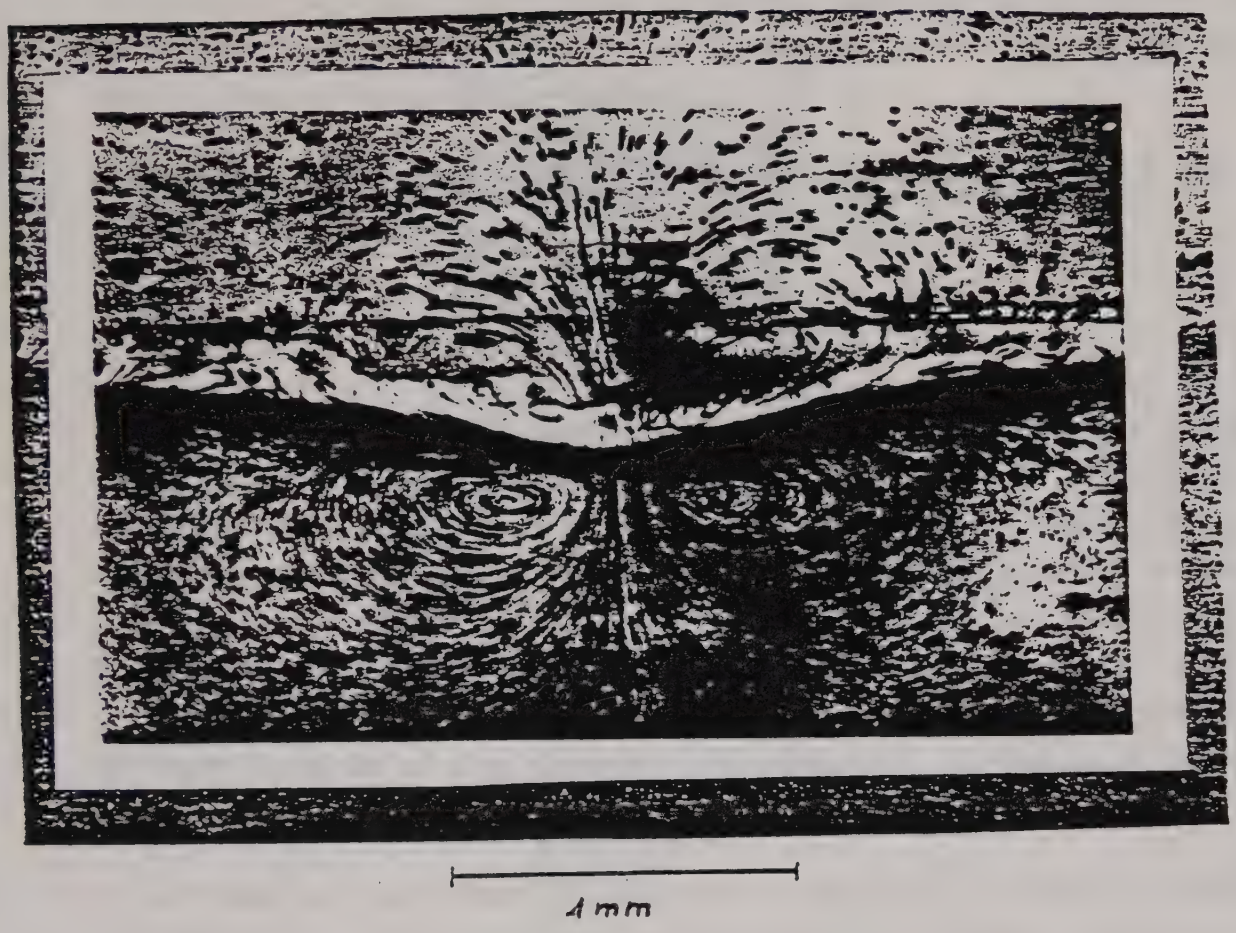
3. Forces de Marangoni d'origine chimique

Ce phénomène se rencontre aussi dans le cas d'une interface liquide-liquide en présence d'un gradient non pas thermique, mais de composition. Une réaction chimique au voisinage d'une interface peut déclencher une convection dans les fluides adjacents. C'est le cas du sytème bi-couche suivant étudié par H. LINDE {3} :

.../...

FIGURE 5

Convection de Marangoni du type chimique

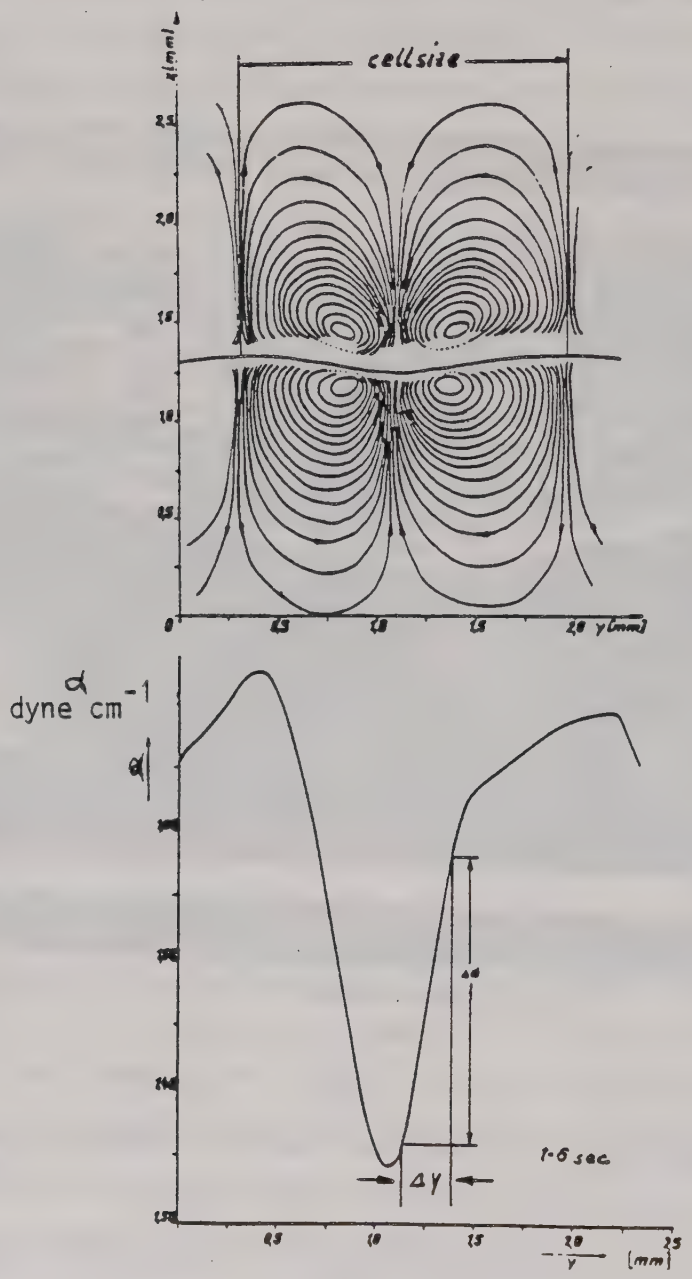


Une inhomogénéité en composition, due par exemple à une réaction chimique au voisinage d'une interface engendre une convection de part et d'autre de cette interface. C'est un mécanisme analogue qui opère dans un fluide dont une surface est ouverte à l'air libre.

La photographie a été prise par H. LINDE de l'Institut de Chimie Physique à Berlin-Est.

FIGURE 6

Lignes de courant de part et d'autre d'une interface liquide-liquide et distribution de la tension interfaciale le long de l'interface selon H. LINDE.



$$\frac{C_5 H_{11}OH + 1\ \%\ C_{16} H_3OSO_3Na}{H_2O}$$

La solution supérieure est constituée par un mélange de Pentanol et de 1 % de sulfate de Na. Le liquide inférieur est de l'eau. Par effet Marangoni d'origine chimique, une convection apparaît au voisinage de l'interface liquide-liquide (Figure 5) provoquant un changement de courbure de celle-ci. L'évolution de la tension interfaciale le long de l'interface et la taille des cellules convectantes sont représentées aussi sur la figure 6. On s'aperçoit bien alors qu'une inhomogénéité de tension superficielle sur une interface induit une convection au voisinage de celle-ci, ainsi qu'une variation de sa courbure.

III - ETUDE DE LA REPONSE DE LA SURFACE LIBRE D'UNE MONOCOUCHE SOUMISE A UNE EXCITATION THERMIQUE EXTERIEURE MODULEE SPATIALEMENT

A. Introduction

Nous avons vu, avec les expériences décrites précédemment, que lorsqu'un fluide est soumis à une quelconque distribution spatiale de température (ou de concentration) il apparaissait une déformation de la surface libre, ou de l'interface liquide-liquide. Le fluide en mouvement est soumis à des forces en volume et des forces en surface. Il s'agit de savoir ici qu'elle est le rôle joué par ces deux forces dans la déformation de l'interface. La réponse à cette question peut être trouvée, si on examine comment se comporte la surface libre vis-à-vis du flux ascendant. Autrement dit, la montée du fluide chaud provoque-t-elle une dépression ou un gonflement local de l'interface ?

Les résultats expérimentaux sont contradictoires à ce propos : Bénard et Volkovisky {12}, ont trouvé que les aires les plus chaudes, c'est-à-dire les aires de flux ascendant sont dépressives. Cependant, Berg, Acrivos et Boudiart {13} ont trouvé un résultat contraire. La nature des liquides utilisés étant très différente des effets non-Boussinesquien ou non-Newtonien, ou les deux à la fois, pourraient être à l'origine de cette contradiction ; pour un liquide Newtonien, les calculs effectués {14}, prévoient un comportement pour l'interface comme suit :

* si la convection du fluide est gouvernée par les forces en surface (force de Marangoni), les zones ascendantes du fluide chaud provoquent une dépression de la surface libre.

* si la convection du fluide est gouvernée par les forces en volume (force d'Archimède), la surface libre au-dessus du flux ascendant présente au contraire un gonflement (Figure 7).

On passe du premier comportement au second, en augmentant l'épaisseur du fluide convectant (10). Ainsi, le comportement de la surface libre est opposé selon que l'un ou l'autre des deux mécanismes existants prédomine. Il a été suggéré alors {15} qu'il existait une épaisseur dite "critique" pour laquelle les deux effets se compenseraient. Dans ces conditions un fluide qui convecterait avec cette épaisseur, présenterait une surface lisse.

Le but de ce travail est de calculer l'épaisseur "critique" pour un fluide Newtonien soumis à une perturbation thermique extérieure faible et modulée spatialement. Nous allons montrer que pour un vecteur d'onde particulier de la perturbation thermique imposée au fluide, il existe une épaisseur du fluide pour laquelle on observe un changement dans le sens de la déformation de la surface libre, vis à vis du flux ascendant.

B. Calcul de l'amplitude de la déformation de la surface libre

1) Les hypothèses du calcul

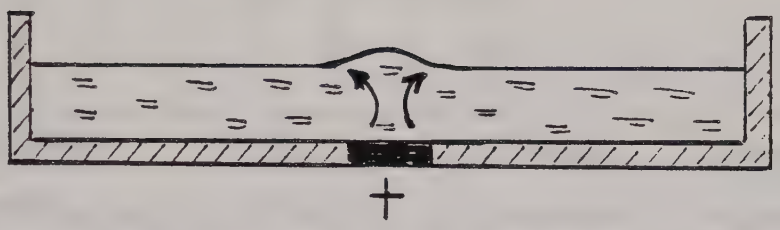
Sur le plan d'une surface horizontale rigide se trouve dans le champ de pesanteur, une mince couche liquide inégalement chauffée. Sa température est une fonction donnée de la coordonnée x, le long de la couche, et celle-ci étant supposée fine (son épaisseur est très petite devant la dimension latérale du fluide) on peut la supposer indépendante de z (Figure 8).

L'échauffement donne lieu au développement d'une distribution spatio-temporelle de température dans le liquide et sur sa surface. La masse volumique ρ_1 et la tension superficielle α_1 étant des fonctions en général décroissante de la température, le liquide est soumis à la fois, à des forces de gravité et de Marangoni. En effet, sur la surface libre apparaît une modulation de température qui induit une modulation de la tension superficielle (effet Marangoni).

.../...

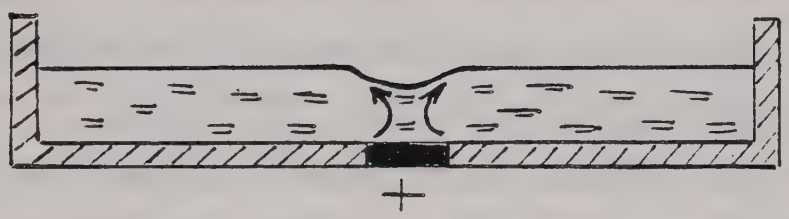
FIGURE 7

Comportement de la surface libre d'une couche mince chauffée localement et soumise à des forces d'Archimède et de Marangoni.



a) les forces d'Archimède sont plus importantes que les forces de Marangoni : le flux ascendant donne lieu à une sur-élévation locale de la surface libre.

$$\left(\frac{\partial \rho}{\partial T} < 0\right)$$



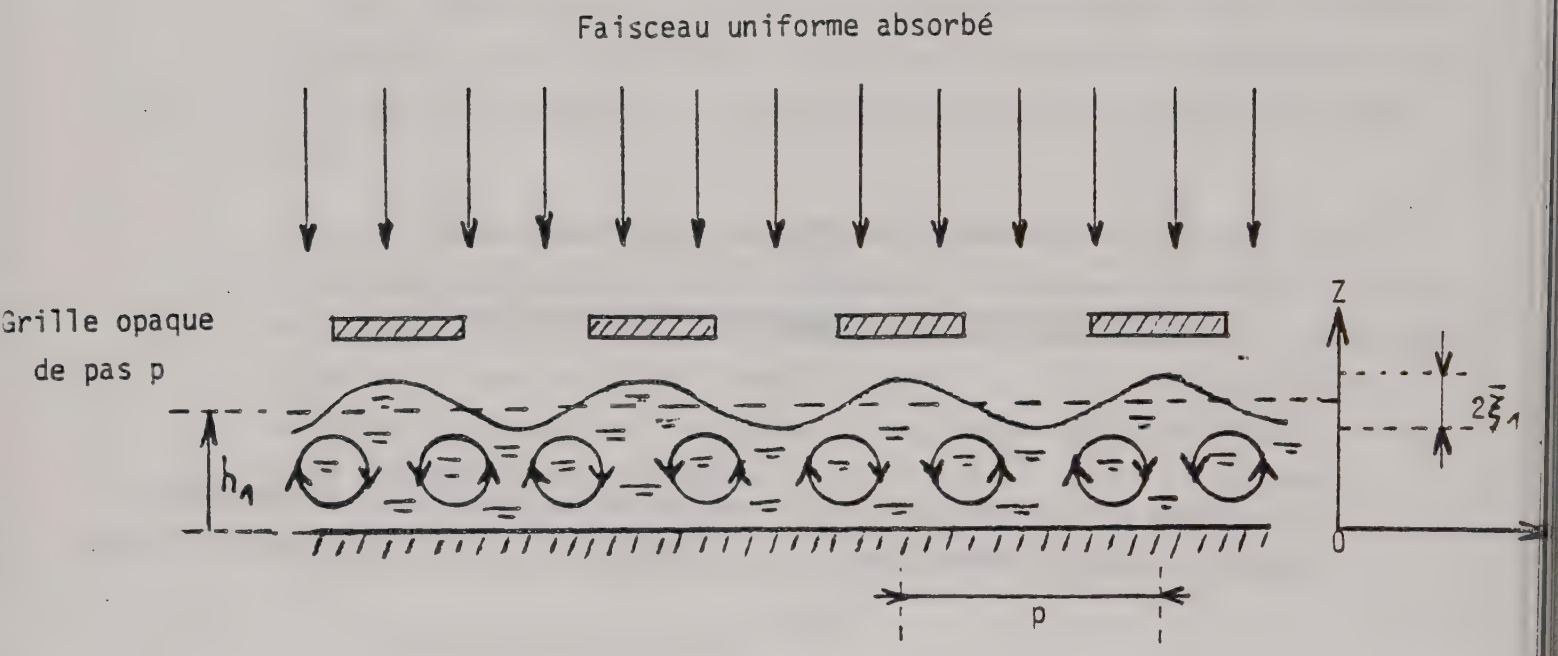
b) les forces de Marangoni sont plus importantes que les forces d'Archimède : le flux ascendant donne lieu à une dépression locale de la surface libre.

$$\left(\frac{\partial \alpha}{\partial T} < 0\right)$$

$\vec{g}\delta\rho$ force d'Archimède par unité de volume. Elle est verticale.

$\vec{\nabla}\alpha$ force de Marangoni par unité de surface. Elle est horizontale.

FIGURE 8



Le liquide est une couche mince d'huile déposée sur un support solide horizontal de grande dimension latérale devant son épaisseur.

. sans perturbation extérieure la surface libre est plane.

. soumise à une perturbation thermique extérieure, spatialement périodique de pas p, le fluide se met à convecter sous l'impulsion de force d'Archimède ($g|\delta\rho_1|$) et de force de Marangoni ($|\frac{\partial \alpha 1}{\partial x}|$). La surface libre se déforme et acquiert une déformation périodique d'amplitude $\bar{\xi}_1$ et de pas p.

La nouvelle hauteur du fluide est :

$$\bar{\xi}_1(x) = h_1 + \bar{\xi}_1 \sin \frac{2\pi}{p} x$$

../..

Deux cas peuvent se produire selon l'intensité respective de la force de Marangoni, et de la force d'Archimède :

* le gradient de tension superficielle est faible. Par conséquent étant donnée la relation suivante :

$$|\vec{\nabla}\alpha_1| = \frac{\partial \alpha_1}{\partial x} = \left(\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1}\right)\left(\frac{\partial T_1}{\partial x}\right)$$

ou $\frac{\partial \alpha_1}{\partial x}$ représente la force de Marangoni par unité de surface, agissant sur la surface libre du liquide

$\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1}$ l'effet Marangoni thermique.

$\frac{\partial T_1}{\partial x}$ le gradient thermique imposé à la surface libre du liquide.

Cette situation se produit, si le gradient thermique sur la surface libre est négligeable (perturbation thermique avec une grande longueur d'onde) ou bien encore si la constante $\frac{\partial \alpha 1}{\partial T_1}$ est petite (faible échauffement de la surface libre).

La convection dans le liquide est commandée par le flux ascendant, c'est-à-dire par la force d'Archimède. Elle induit sous la surface libre, à la verticale du flux ascendant une surpression déformant la surface libre vers le haut. Il apparaît une bosse vis à vis du flux montant (Figure 7). Ce phénomène a été observé dans des expériences d'instabilités de Bénard-Marangoni {10} lorsque l'épaisseur de la couche d'huile est supérieure à 3 mm.

* Au contraire le gradient de tension superficielle est grand. Ce cas se produit par exemple lorsque l'apport de chaleur amenée par le flux ascendant est important. L'effet Marangoni est par conséquent grand. La convection du fluide est donc principalement gouvernée par les forces de traction horizontales. Elles induisent sous la surface libre à la verticale du flux ascendant, une dépression. Il apparaît un creux vis à vis du flux ascendant (Figure 7). Ceci a été observé en convection libre {10} (Instabilités de Bénard-Marangoni) avec des couches d'huiles d'épaisseurs inférieures à 2 mm.

../..

Il s'ensuit donc, une variation de son épaisseur $\xi_1(x)$. On désire déterminer la fonction $\xi_1(x) = h_1 + \bar{\xi}_1 \sin kx$ avec $\bar{\xi}_1 \ll h_1$ hauteur initiale du fluide et $k = \frac{2\pi}{p}$ le vecteur d'onde de l'excitation thermique :

Le calcul est fait dans le cas où la déformation de la surface libre est petite devant la hauteur du fluide et le formalisme de Fourier en régime stationnaire sera utilisé pour écrire les solutions des équations de Navier-Stokes. Nous supposerons le fluide incompressible. En ce qui concerne la variation de densité en fonction de la température du fait que le fluide est irrégulièrement chauffé, on ne saurait évidemment en faire abstraction puisque c'est une des composantes fondamentales du mouvement du fluide.

On choisit un système de coordonnées tel que :

$z = 0$ définit l'interface solide-fluide

$z = h_1$ définit l'interface fluide-air et x la coordonnée horizontale.

On posera pour la température du fluide

$$T_1(x) = \bar{T}_1 + \delta T_1 \sin kx$$

avec $\delta T_1 \ll \bar{T}_1$, $\bar{T}_1$ étant la température moyenne du fluide.

On posera également la densité variable $\rho_1(x)$ sous la forme

$$\rho_1(x) = \bar{\rho}_1 + \delta\rho_1 \sin kx$$

$\bar{\rho}_1$ étant la valeur moyenne constante, à partir de laquelle est comptée l'inégalité de la densité $\delta\rho_1$. On suppose $\delta\rho_1$ petite devant $\bar{\rho}_1$, étant donné que la variation de température δT_1 est faible.

On écrira :

$$\delta\rho_1 = \left(\frac{\partial\rho_1}{\partial T_1}\right)_p \delta T_1 = -\rho_1 \beta \delta T_1 \qquad \text{avec} \qquad \beta = \frac{-1}{\rho_1} \frac{\partial\rho_1}{\partial T_1} > 0$$

le coefficient de dilatation thermique du fluide. Il est de l'ordre de 10^{-3} °C^{-1}(voir tableau I) pour la plupart des liquides.

L'échauffement inégal de la surface libre du fluide entraîne l'existence de forces en surface ou forces de Marangoni. Ces forces contribueront aussi au mouvement de convection du fluide. On exprimera la

../..

Constantes physiques à 20 °C d'après "Handbook of Chemistry and Physics"

NOM	$\bar{\alpha}_1$ (dyne cm^{-1})	$\bar{\rho}_1$ (g cm^{-3})	$\gamma \times 10^{-3}$ ($°C^{-1}$)	$\beta \times 10^{-3}$ ($°C^{-1}$)	$\left[\frac{\bar{\alpha}_1}{g\bar{\rho}_1}\frac{\gamma}{\beta}\right]^{1/2}$ (mm)
Iodure de méthylène	52	3,33	3	1	0,22
Méthanol	22,5	0,81	3,8	1,20	
Bromonaphtalène	37,4	1,49	2,7		
Iodonaphtalène	47,1	1,74	2,1		
Eau	72-73	1	2,2	0,2	0,89
Sulfure de carbone		1,3		1,22	
Huile 3 cst	19,2	0,9	4,2	1	3
Huile 0,65 cst	15,9	0,76	5	1,34	2,83
Ether	20	0,74	4	1,66	
Hg	486	13,55		0,18	

Tableau I

variation de la tension superficielle $\alpha_1(x)$ sous la forme :

$$\alpha_1(x) = \bar{\alpha}_1 + \delta\alpha_1 \sin kx$$

$\bar{\alpha}_1$ étant une valeur moyenne constante, à partir de laquelle est comptée l'inégalité de la tension superficielle $\delta\alpha_1$. On suppose, comme pour la densité que $\delta\alpha_1$ est petite devant $\bar{\alpha}_1$ on écrira :

$$\delta\alpha_1 = \left(\frac{\partial\alpha_1}{\partial T_1}\right)_p \delta T_1 = -\bar{\alpha}_1 \gamma \delta T_1$$

avec $$\gamma = \frac{-1}{\bar{\alpha}_1} \frac{\partial\alpha_1}{\partial T_1} > 0$$

γ est la variation thermique relative de la tension superficielle du fluide. Elle est de l'ordre de 10^{-3} °C^{-1} (voir tableau I) pour la plupart des liquides.

2) LES EQUATIONS HYDRODYNAMIQUES LINEARISEES

$$\eta_1 \Delta\vec{v}_1 - \text{grad } p_1 + \rho_1\vec{g} = 0$$

$$\text{div } \vec{v}_1 = 0$$

On projette sur les axes x et z ces deux équations :

$$\partial_x p_1 = \eta_1 (\partial^2_{xx} + \partial^2_{zz}) u_1 (x,z) \quad (1)$$

$$\partial_z p_1 = -\rho_1 g + \eta_1 (\partial^2_{xx} + \partial^2_{zz}) w_1 (x,z) \quad (2)$$

$$\partial_x u_1 + \partial_z w_1 = 0 \quad (3)$$

L'élimination de la pression et de la vitesse horizontale donne :

$$\eta_1 (\partial^2_{xx} + \partial^2_{zz})^2 w_1 = g\partial^2_{xx} \rho_1(x) \quad (4)$$

On cherche des solutions periodiques dans la direction x du type :

$$w_1(x,z) = \bar{w}_1(z) \sin kx$$

(4) s'écrit alors

$$\eta_1 (\partial^2_{xx} + \partial^2_{zz})^2 w_1(x,z) = -k^2 g \delta\rho_1 \sin kx$$

../..

et compte-tenu de la forme choisie pour $w_1(x,z)$:

$$(\partial^2_{zz} - k^2)^2 \overline{w}_1(z) = -g \frac{k^2}{\eta_1} \delta\rho_1 \qquad (5)$$

La solution de l'équation (5) est égale à :

$$\overline{w}_1(z) = (A_1 + B_1 \frac{z}{h_1}) \text{ ch } kz + (C_1 + D_1 \frac{z}{h_1}) \text{ sh } kz + \frac{-g\delta\rho_1}{\eta_1 k^2}$$

3/ LES CONDITIONS AUX LIMITES :

Sur la paroi solide :

en $z = 0$ $\qquad \overline{w}_1 = 0 \longrightarrow A_1 = \frac{g\delta\rho_1}{\eta_1 k^2} \qquad (6)$

Sur la surface libre :

en $z = h_1$ $\qquad \overline{w}_1 = 0 \longrightarrow (A_1 + B_1)C + (C_1 + D_1)S = A_1 \qquad (7)$

en posant $C = \text{ch } k\, h_1 = \text{ch } \delta_o$ $\qquad S = \text{sh } k\, h_1 = \text{sh } \delta_o$

L'équation de continuité, div $\vec{v}_1 = 0$, appliquée au fond du liquide donne :

$$\partial z\, \overline{w}_1 \Big|_{z=0} = 0 \rightarrow \delta_o C_1 + B_1 \qquad (8)$$

La contrainte thermique, imposée sur la surface libre crée des tensions horizontales qui sont équilibrées par les tensions visqueuses de l'écoulement, suivant l'équation :

$$\eta_1\, \partial_z\, u_1 \Big|_{z=h_1} = \frac{\partial \alpha_1}{\partial x} = (\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1})(\frac{\partial T_1}{\partial x})$$

ou soit encore :

$$\eta_1\, \partial^2_{zz}\, \overline{w}_1 \Big|_{z=h_1} = k^2\, \delta\alpha_1 \rightarrow$$

$$(A_1 + B_1)\, C\delta_o + (C_1 + D_1)\, S\delta_o + 2(B_1 S + D_1 C) = \frac{\delta_0 \delta\alpha_1}{2\eta_1} \qquad (9)$$

de l'équation (7) on peut en déduire que :

$$\{B_1 C + (C_1 + D_1)\, S\}\, \delta_0 = A_1\, (1 - C)\, \delta_0$$

../..

l'équation (9) s'écrit :

$$B_1 S + D_1 C + \frac{1}{2} A_1 \delta_0 = \frac{\delta_0 \delta\alpha_1}{2\eta_1} \qquad (10)$$

4/CALCUL DE LA PRESSION p_1 DANS LE FLUIDE

l'équation (2) donne :

$$\partial_z p_1 = -\rho_1 (x)\, g + \eta_1 (\partial^2_{zz} - k^2)\, w_1$$

et en intégrant :

$$p_1 = -\rho_1(x)\, gz + \eta_1 (-k^2 \int w_1\, d_z + \partial_z w_1) + C^{ste}$$

en $z = h_1$ et $\sin kx = 0$ → $p_1 = p_a$ (pression atmosphérique)

ce qui donne pour la constante la valeur :

$$C^{ste} = p_a + \overline{\rho}_1\, gh_1$$

en définitive la pression dans le fluide est égale à :

$$p_1 = -\rho_1(x)\, gz + \eta_1(-k^2 \int w_1\, dz + \partial_z w_1) + p_a + \overline{\rho}_1\, gh_1 \qquad (11)$$

5/ CALCUL DE L'AMPLITUDE $\overline{\xi}_1$ DE LA DEFORMATION DE LA SURFACE

En négligeant les mouvements dans l'air à l'interface air-liquide, on obtient :

$$p_a = \{p_1 - 2\eta_1\, \partial_z w_1\}\, \xi_1(x) + \alpha_1 \frac{\partial^2 \overline{\xi}_1}{\partial x^2}$$

avec $\xi_1(x) = h_1 + \overline{\xi}_1 \sin kx$

ce qui donne, en remplacant p_1 par l'équation (11) :

$$- (\delta\rho_1 \sin kx)\, gh_1 + \eta_1 \{(\partial^2_{xx} \int w_1\, dz - \partial_z w_1\}_{z \cong h_1} =$$

$$(\overline{\rho}_1\, g + \alpha_1 k^2)\, \overline{\xi}_1 \sin kx$$

$$\overline{\xi}_1 \left[\overline{\rho}_1\, g + \alpha_1 k^2\right] = -\eta_1 k^2 \{A_1 h_1 + \left[\int dz\, \overline{w}_1 + \frac{1}{k^2} \partial_z \overline{w}_1\right]_{z \cong h_1} \}$$

calcul de $\left[\int dz\, \overline{w}_1 + \frac{1}{k^2} \partial_z \overline{w}_1\right]_{z \cong h_1}$

../..

Appliqué en $z = h_1$, on trouve

$$\frac{2}{k}\left[A_1 S + C_1 C + B_1 S + D_1 C\right] - A_1 h_1$$

or d'après (10)

$$B_1 S + D_1 C = -\frac{1}{2} A_1 \delta_o + \frac{\delta_o \delta\alpha_1}{2\eta_1}$$

donc l'amplitude de la déformation de la surface libre sera égale à :

$$\overline{\xi}_1 \left[\overline{\rho}_1 g + \overline{\alpha}_1 k^2\right] = -2\eta_1 k^2 \{C_1 C + A_1 (S - \frac{1}{2}\delta_o) + \frac{\delta_o \delta\alpha_1}{2\eta_1}\} \quad (12)$$

Remarque : Sans perturbation extérieure l'interface liquide-air est plane et son altitude est $z = h_1$; avec une perturbation extérieure infinitésimale, l'interface est légèrement déformée, et sa nouvelle altitude est $z = h_1 + \xi_1(x)$.

Si $\xi_1(x) \ll 1$, on peut effectuer les calculs en prenant comme valeur $z = h_1$ et non $z = h_1 + \xi_1(x)$. Cela revient à négliger dans les développements des termes en $\xi_1(x)$ d'ordre supérieur à 1.

6/ CALCUL DU COEFFICIENT C_1

Il est calculé à partir des équations (7), (8) et (10) qui sont :

$$(7) \rightarrow B_1 C + (C_1 + D_1) S = A_1 (1 - C)$$

$$(8) \rightarrow B_1 + C_1 \delta_o = 0$$

$$(10) \rightarrow B_1 S + D_1 C + \frac{1}{2} A_1 \delta_o = \frac{\delta_o \delta\alpha_1}{2\eta_1}$$

Ce système d'équation linéaire permet de calculer C_1 en fonction de A_1 , C et S.

On trouve que C_1 est égal à :

$$C_1 = \frac{-S\delta_o \delta\alpha_1}{2(SC - \delta_o)\eta_1} + \frac{A_1}{SC - \delta_o}\{-C(C-1) + \frac{S\delta_o}{2}\}$$

en remplaçant C_1 dans (12) on trouve :

$$\overline{\xi}_1\{\overline{\rho}_1 g + \overline{\alpha}_1 k^2\} = 2\eta_1 k^2 \{\frac{-A_1}{2k(SC - \delta_o)}\left[2C(C-1) - 2S\delta_o + \delta_o^2\right] + \frac{k^2 \delta_o^2 \delta\alpha_1}{k(CS - \delta_o)}$$

../..

L'expression définitive de l'amplitude sera égale à la somme de deux termes :

$$\bar{\xi}_1 = \frac{- g\delta\rho_1 \, \phi(\delta_o)}{\bar{\rho}_1 \, g \, (1 + \delta_o^2 \, \Lambda_c^2) \, k(SC - \delta_o)} + \frac{k^2 \, \delta_o^2 \, \delta\alpha_1}{\bar{\rho}_1 \, g \, (1 + \delta_o^2 \, \Lambda_c^2) k(SC-\delta_o)} \qquad (13)$$

avec $\phi(\delta_o) = 2C\,(C-1) - 2\,S\delta_o + \delta_o^2$

et $\Lambda_c^2 = \frac{\lambda_c^2}{h_1^2} = \frac{\bar{\alpha}_1}{\bar{\rho}_1 \, g \, h_1^2}$

Λ_c^2 est la longueur capillaire adimensionnée du fluide. Elle détermine la forme de la surface libre du fluide dans le champ de pesanteur.

On constate que l'amplitude $\bar{\xi}_1$ est égale à la somme de deux termes

* un terme faisant appel à des forces en volume ou force d'Archimède :

$$\frac{- \phi(\delta_o) \, (\frac{\partial \rho_1}{\partial T_1}) \, \delta T_1}{\bar{\rho}_1 \, g \, (1 + \delta_o^2 \, \Lambda_c^2) \, k(SC - \delta_o)}$$

* un terme faisant appel aux forces en surface ou force de Marangoni :

$$\frac{k_2 \, \delta_o^2 \, (\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1}) \, \delta T_1}{\bar{\rho}_1 \, g \, (1 + \delta_o^2 \, \Lambda_c^2)} \qquad \frac{1}{k(SC - \delta_o)}$$

7/ ETUDE DU SIGNE DE L'AMPLITUDE

En général, les liquides ont $\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1}$ et $\frac{\partial \rho_1}{\partial T_1}$ négatifs. Par conséquent, le signe de ces deux termes dépendra de celui de $\phi(\delta_o)$.

Il dépend du signe du numérateur de l'équation (13), le dénominateur étant toujours positif quelque soit la valeur de δ_o.

Il existe deux possibilités :

a) si $g \, |\delta\rho_1| \, \phi(\delta_o) - k^2 \, \delta_o^2 \, |\delta\alpha_1| > 0$

L'amplitude $\bar{\xi}_1$ est positive. Il y a gonflement de la surface libre

b) si $g \, |\delta\rho_1| \, \phi(\delta_o) - k^2 \, \delta_o^2 \, |\delta\alpha_1| < 0$

../..

L'amplitude $\overline{\xi}_1$ est négative. Il y a dépression de la surface libre(Figure 7).

Ces deux états opposés de la surface libre sont séparés par le cas où l'expression (13) s'annule, c'est-à-dire pour :

$$g\,|\delta\rho_1|\,\phi\,(\delta_o) = k^2\,\delta_o{}^2\,|\delta\alpha_1| \qquad (14)$$

Dans ces conditions, la surface libre reste plane bien que le fluide convecte.

L'expression (13) est vérifiée pour une valeur δ_o précise, cela signifie que l'on peut étudier le problème de deux manières différentes :

a) l'épaisseur du fluide est imposée, et le vecteur d'onde de la perturbation thermique change. Il existe alors une valeur k de la perturbation pour laquelle il se produit un changement dans le sens de la déformation de la surface libre. D'un point de vue expérimental, cela revient à projeter sur le liquide un réseau de franges d'interfèrence à pas variable.

b) le vecteur d'onde de la perturbation est imposé et l'épaisseur du liquide change. Il existe alors une valeur h_1 pour l'épaisseur, avec laquelle il apparaît un changement dans le sens de la déformation de la surface libre. L'épaisseur du fluide pour laquelle se produit ce comportement est appelée épaisseur "critique" {15}. D'un point de vue expérimental, cela revient à verser un liquide dans une cuve, dont le fond serait constitué par une lame de verre épaisse sur laquelle on aurait évaporé une grille métallique unidimensionnelle de pas donné, chauffée par effet joule. La variation d'épaisseur du liquide pourrait être obtenue, par exemple, en vidant doucement la cuve.

8/ RESOLUTION DE L'EQUATION (14)

On remplace $\phi\,(\delta_o)$ par sa valeur dans l'équation 14.

$$g\,|\delta\rho_1|\,\{2\,|\overline{C}\,(C-1) - S\,\overline{\delta_o}| + \delta_o{}^2\} = k^2\,\delta_o{}^2\,|\delta\alpha_1| \qquad (15)$$

On calcule la valeur du pas p de la perturbation thermique pour laquelle l'égalité précédente est vérifiée. Le problème est résolu graphiquement en prenant comme paramètres :

- l'épaisseur h_1 du fluide

../..

- les propriétés thermiques du fluide (β et γ)

L'équation (15) peut s'écrire :

$$2\{C(C-1) - S\delta_0\} = \lambda_T^2 k^2 - 1)\ \delta_0^2$$

en posant $$\lambda_T^2 = \frac{\partial\alpha_1/\partial T_1}{g(\partial\rho_1/\partial T_1)} = \frac{\bar{\alpha}_1\ \gamma}{g\bar{\rho}_1\beta}$$

λ_T a les dimensions d'une longueur comme λ_c , la longueur capillaire du fluide. Nous l'appelerons "longueur capillaire thermique" du fluide. Le sens de la déformation de la surface libre du fluide convectant sous l'action conjointe de forces en volume et en surface est déterminée par cette quantité.
Le tableau I donne quelques valeurs de λ_T.

On pose :

$$F = 2C(C-1) - 2S\delta_0$$

et

$$G = \delta_0^2 (1_0^2 k^2 - 1)$$

On calcule F et G en fonction de p pour h_1 donné, et l'intersection des courbes F et G pour une valeur p particulière (voir Figure 9) donne le pas p de la perturbation thermique extérieure pour laquelle la surface libre reste plane.

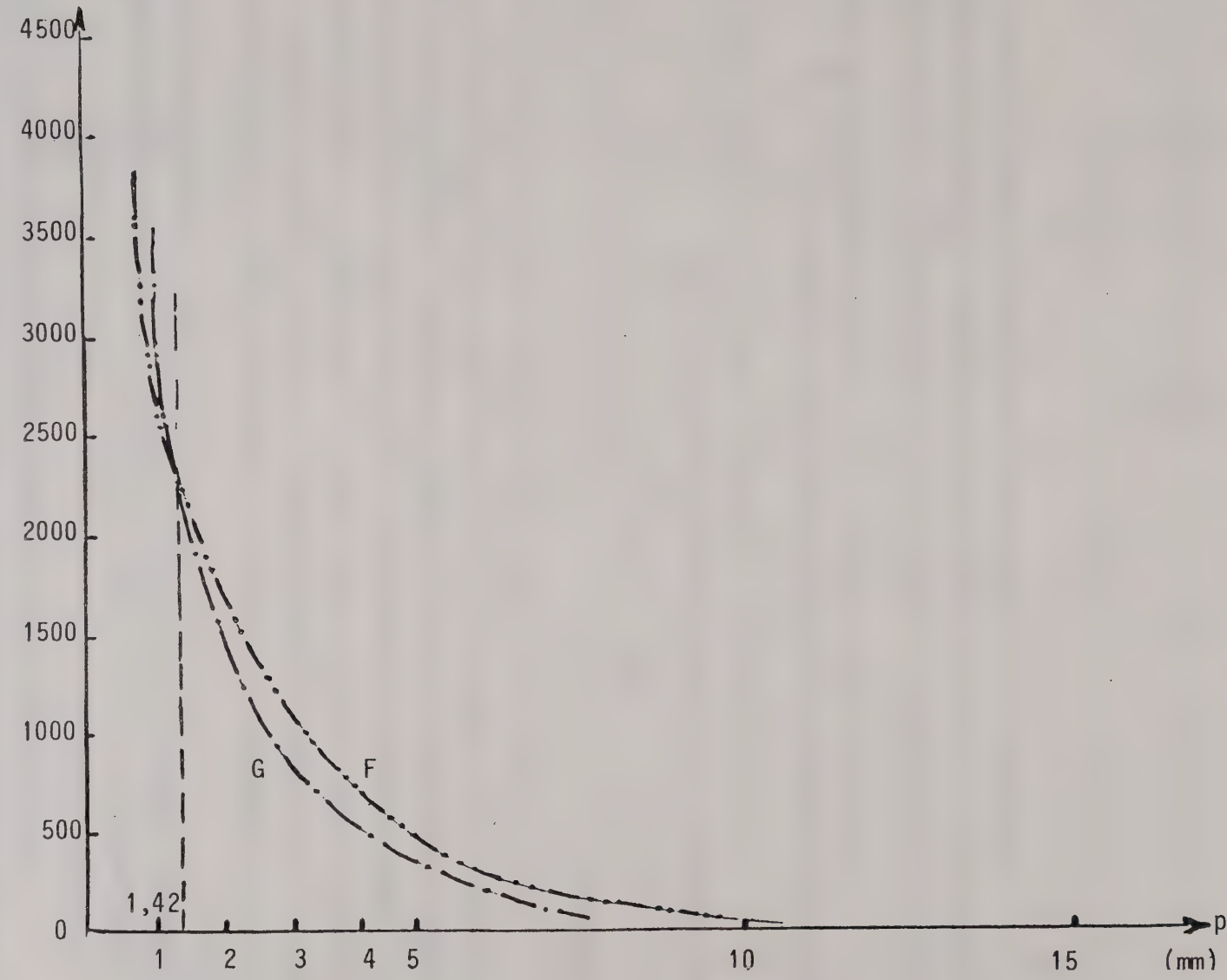
Le tableau II suivant donne les valeurs du pas p ainsi obtenues, pour différentes épaisseurs du fluide.

Epaisseur en mm	p en mm
0,1	0,08
0,2	0,18
0,3	0,30
0,4	0,43
0,5	0,57
0,6	0,73
0,7	0,88
0,8	1,05
0,9	1,23
1	1,42
1,5	2,5
2	4
2,5	5,7
3	7,8

- Tableau II -

.../...

- Figure n° 9 -



Exemple de résolution graphique de l'équation $g|\delta\rho_1|\ \phi(\delta_o) = k^2\ \delta_o{}^2\ |\delta\alpha_1|$ pour une huile d'épaisseur 1mm

$\lambda_c \simeq 1{,}5$ mm $\quad \lambda_T \simeq 3$ mm . Les deux courbes se coupent en p = 1,42 mm.

Le tableau II a été calculé pour une huile aux silicones (16) de 0,65 cst de viscosité dont les grandeurs physiques à 20°C sont :

$\bar{\alpha}_1 = 20$ dyne cm^{-1} $\qquad \left|\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1}\right| = 810^{-2}$ dyne cm^{-1} $°C^{-1}$

$\bar{\rho}_1 = 1$ g cm^{-3} $\qquad \left|\frac{\partial \rho_1}{\partial T_1}\right| = 10^{-3}$ g cm^{-3} $°C^{-1}$

longueur capillaire $\lambda_c = 1{,}43$ mm $\qquad \lambda_T = 2{,}85$ mm

Par exemple, si on prend cette couche mince d'huile avec 3 mm d'épaisseur, et si on la soumet à une perturbation thermique extérieure, dont le pas p est variable, sa surface libre se comportera de la façon suivante :

. pour un p compris entre $0 < p < 7{,}8$ mm la déformation $\bar{\xi}_1$ sera positive. On aura un gonflement. Les effets Marangoni sont faibles.

. pour un p supérieur à 7,8 mm, la déformation $\bar{\xi}_1$ sera négative. On aura une dépression. Les effets Marangoni sont importants.

. pour p = 7,8 mm, la surface libre reste plane. Les deux effets se compensent.

Les courbes de la figure 10 représentent l'évolution de l'amplitude de la déformation, en grandeur et en signe, en fonction de la longueur d'onde de la perturbation thermique pour différentes épaisseurs. On constate que le sens de la déformation est commandée par les lois de la gravité, pour un domaine de longueur d'onde de plus en plus large, si l'épaisseur du fluide augmente. Inversement si l'épaisseur du fluide diminue, le sens de la déformation de la surface libre est commandée par les forces de Marangoni dans un large domaine du vecteur d'onde.

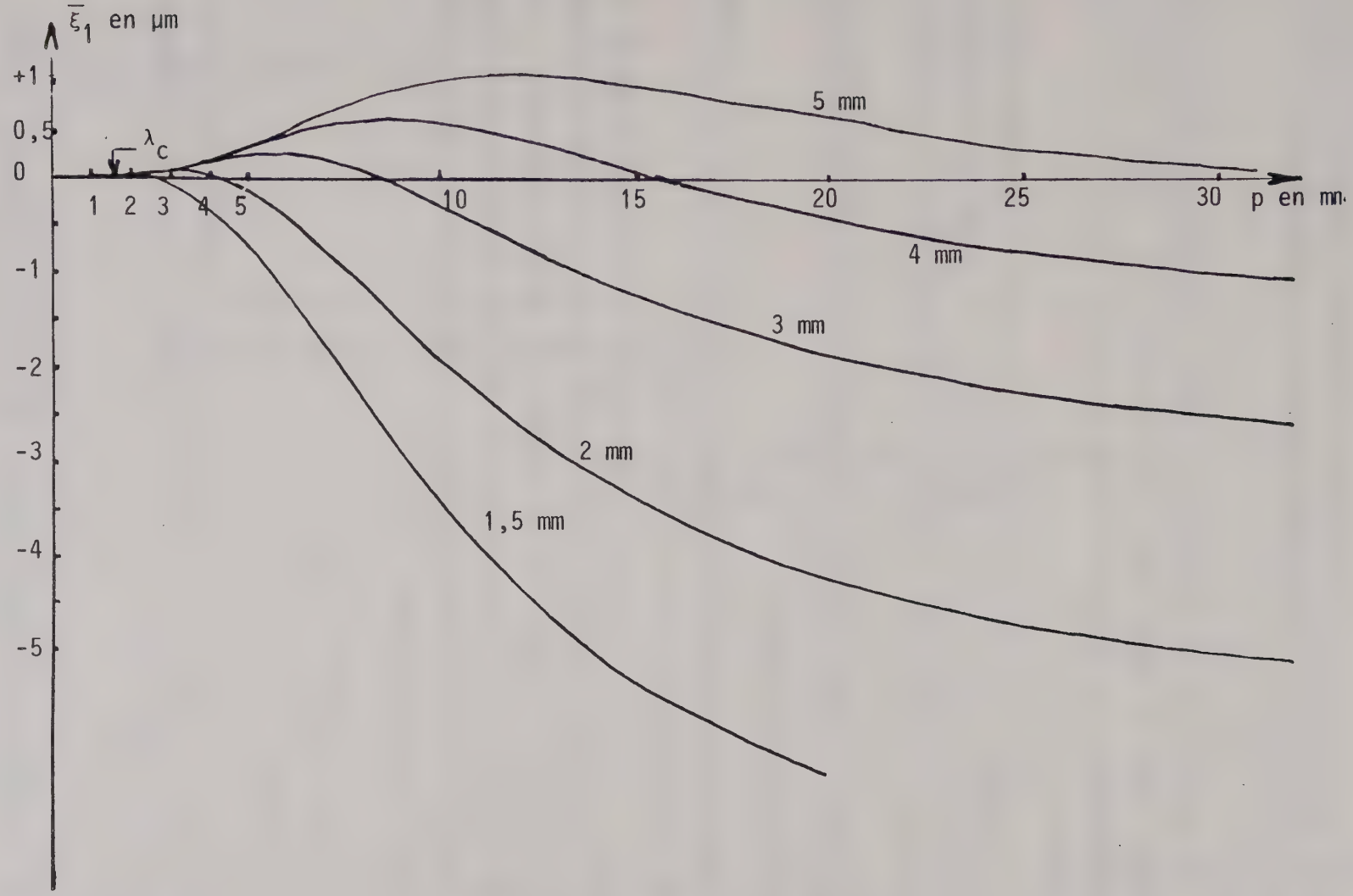
Remarque : Comparons le comportement de la surface libre du fluide, perturbé thermiquement, à la forme qu'elle prendrait en équilibre thermodynamique dans le champ de pesanteur {17}. On remarque l'analogie suivante :

si $\lambda_T \gg h$ (cas des couches d'épaisseurs très faibles) on peut faire abstraction des forces de pesanteur pour déterminer le sens de la déformation de la surface libre vis-à-vis du flux ascendant.

si $\lambda_T \ll h$ (cas des couches d'épaisseurs très fortes). On peut faire abstraction des forces de Marangoni pour déterminer le sens de la déformation de la surface libre, vis-à-vis du flux ascendant.

../..

- Figure n°10 -



Compétition entre force de gravité et force superficielle dans une lame d'huile. Influence de l'épaisseur.

λ_c = 1,43 mm λ_T = 2,85 mm

Par conséquent, on peut dire que "la longueur capillaire thermique" λ_T joue dans un problème de convection où les forces de pesanteur et de Marangoni interviennent, un rôle semblable à celui de la "longueur capillaire mécanique" dans un problème hydrostatique.

Si on porte sur un graphique les valeurs du tableau II, on obtient une courbe délimitant deux espaces, correspondant chacun à un comportement différent de la surface libre (Figure 11).

- l'espace situé au-dessus de la courbe, correspond à une déformation de la surface libre en bosse donc à un gonflement. Les forces de gravité sont alors prépondérantes, et la convection du fluide est essentiellement gouvernée par ces forces.

- l'espace au-dessous de la courbe, correspond à une déformation de la surface libre en creux donc à une dépression. Les forces de Marangoni sont importantes, et la convection du fluide est gouvernée par les forces en surface.

9/ COMPORTEMENT DE L'AMPLITUDE DE LA DEFORMATION DE LA SURFACE LIBRE EN FONCTION DU PAS p DE LA PERTURBATION

Deux cas limites sont intéressants, lorsque le pas p de la perturbation thermique extérieure tend vers zéro ou l'infini.

a) Lorsque $\delta_o = k\, h_1 \to \infty$, c'est-à-dire, lorsque la longueur d'onde de la perturbation thermique devient petite devant h_1 ($p \ll h_1$), le terme de Marangoni s'amortit exponentiellement plus rapidement que le terme de gravité. L'amplitude de la déformation $\bar{\xi}_1$ est donc positive et tend vers zéro comme p. Le comportement de la surface libre aux petites longueurs d'onde est alors principalement gouverné par les forces de pesanteur.

$$\bar{\xi}_1 \cong \delta_o^3 \exp(-2\,\delta_o) \to 0$$

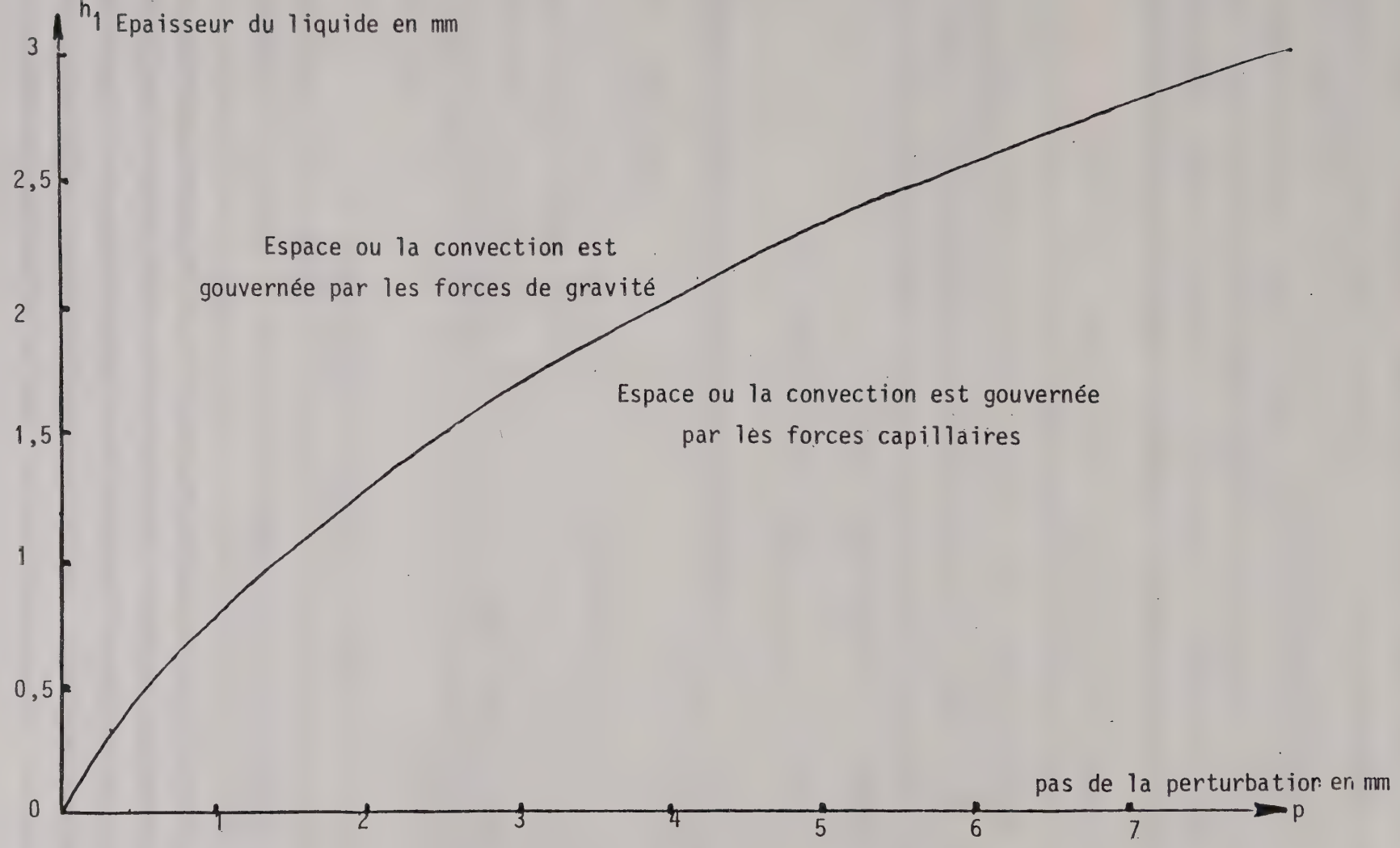
$\bar{\xi}_1$ est très petit.

b) Lorsque $\delta_o = kh_1 \to 0$, c'est-à-dire lorsque la longueur d'onde de la perturbation devient grande devant h_1 ($p \gg h_1$), l'amplitude $\bar{\xi}_1$ de la déformation prend la forme :

$$\bar{\xi}_1 \to -\frac{3}{2}\,\frac{|\delta\alpha_1|}{\bar{\rho}_1\, g(1 + k^2\lambda_c^2)\, h_1} + \frac{1}{4}\,\frac{g|\delta\rho_1|\, h_1}{\bar{\rho}_1\, g(1 + k^2\lambda_c^2)} \qquad (16)$$

../..

- Figure n°11 -



Courbe donnant en fonction du pas p de la perturbation l'épaisseur du fluide pour laquelle il y a changement du signe de la déformation.

λ_C = 1,43 mm λ_T = 2,85 mm

Les deux termes sont de signe opposé. Le signe de $\bar{\xi}_1$ dépendra du signe du numérateur :

Deux cas sont possibles :

$$\alpha) \qquad \frac{1}{4} g |\delta\rho_1| h_1 - \frac{3}{2} \frac{1}{h_1} |\delta\alpha_1| > 0$$

cette condition est remplie si l'épaisseur du fluide est supérieure à

$$h_1 > 2{,}45\, \lambda_T$$

Pour l'huile, aux silicones $\lambda_T = 2{,}83$ mm, il faut une épaisseur h_1 supérieure à environ 7 mm pour obtenir une déformation positive. Donc, aux fortes épaisseurs et pour des pas grands, la déformation de la surface libre est commandée par les forces de gravité.

$$\beta) \qquad \frac{1}{4} g |\delta\rho_1| h_1 - \frac{3}{2} \frac{|\delta\alpha_1|}{h_1} < 0$$

l'amplitude $\bar{\xi}_1$ de la déformation est négative si l'épaisseur h_1 remplit la condition :

$$h_1 < 2{,}45\, \lambda_T$$

soit, avec le même liquide, pour $h_1 \leq 7$ mm. La convection du fluide est alors principalement gouvernée par les forces de Marangoni et l'amplitude prend la forme simple :

$$\bar{\xi}_1 \cong - \frac{3}{2} \frac{|\delta\alpha_1|}{h_1} \frac{1}{\bar{\rho}_1 g(1 + k^2\lambda_c^2)} \qquad (17)$$

Deux cas sont alors possibles :

1) $k^2\lambda_c^2 \gg 1$ mais tel que $kh_1 \ll 1$ Ce régime est possible si $\lambda_c \gg h_1 < 2{,}45$ pour l'huile aux silicones, nous avions trouvé une longueur capillaire egale à $\lambda_c = 1{,}43$ mm. Cette condition limite sérieusement l'épaisseur de la couche liquide. Ainsi, une couche mince d'huile dont l'épaisseur serait environ inférieure à 150 µm, aurait une amplitude de déformation égale à :

$$\bar{\xi}_1 \cong - \frac{3}{2} \frac{|\partial\alpha_1/\partial T_1| \, \delta T_1}{\alpha_1} \frac{1}{k^2 h_1} \qquad (18)$$

.../...

pour des longueurs d'ondes telles que $p \gg h_1$. Si on veut que l'amplitude de la déformation soit importante, il est nécessaire d'utiliser des couches liquides très minces avec une tension superficielle très faible. Il apparaitra alors une forte réponse pour des longueurs d'ondes petites de la perturbation thermique. Dans ces conditions la convection et la déformation sont commandées essentiellement par les forces de Marangoni et capillaires.

2) $k^2\lambda_c^2 \ll 1$ mais tel que $\delta_o = kh_1 \ll 1$. Ce régime existe pour $\lambda_c \ll h_1 < 2{,}45\ \lambda_T$. Avec une longueur capillaire égale à 1,43 mm, la condition $\lambda_c \ll h_1$ n'est pas satisfaisante. Pour que cette inégalité existe, il est nécessaire d'avoir une longueur capillaire petite, donc d'utiliser un liquide avec une tension superficielle très faible et une forte densité. Dans ces conditions, pour des grandes longueurs d'ondes, l'amplitude de la déformation devient indépendante de la valeur de la tension superficielle :

$$\overline{\xi}_1 \cong \frac{3}{2} \left|\frac{\partial \alpha_1}{\partial T_1}\right| \delta T_1 \frac{1}{\rho_1 g h_1} \qquad (19)$$

On constate que l'amplitude est alors très faible.

C - CONCLUSION

L'étude théorique de la convection induite dans un liquide par une perturbation thermique extérieure, a montré le rôle joué par les deux forces:

- force en volume ou force d'Archimède et force en surface ou force de Marangoni -dans la convection et la déformation de la surface libre du fluide.

Si les forces d'Archimèdes sont plus grandes que les forces de Marangoni, la convection du fluide est principalement gouvernée par les forces de gravité. Il apparaît alors sous la surface libre du fluide à la verticale du flux ascendant une surpression locale qui déforme la surface libre vers le haut ; on observe une bosse. Si les forces de Marangoni sont plus grandes que les forces de pesanteur, la convection du fluide est principalement gouvernée par les forces de Marangoni. Il apparaît alors sous la surface libre du fluide, à la verticale du flux ascendant une dépression locale qui déforme la surface libre vers le bas ; on observe un creux.

../..

Avec un liquide comme une huile aux silicones par exemple, satisfaisant aux approximations de Boussinesq {18} on passe de l'état d'une convection conduite par les forces de gravité à celui d'une convection conduite par les forces de Marangoni, en diminuant l'épaisseur du fluide. Ceci a été récemment mis en évidence par P. Cerisier et J. Pantaloni {10} : l'étude du relief de la surface libre d'une couche d'huile en convection de Bénard-Marangoni présente les aspects suivants :

. pour $h > 3$ mm, la surface libre est bombée (cas inverse à celui de la figure n°3).

. pour $h < 2$ mm, la surface libre est creusée (voir figure n° 3).

Le relief est quasiment plan pour $h \sim 3$mm. La comparaison entre ces observations expérimentales et nos résultats est intéressante. Sachant que la longueur d'onde de la perturbation en convection libre est de l'ordre de 3,4 fois l'épaisseur du liquide ($p \cong 3{,}4\ h$), l'intersection de la droite $h \sim \frac{1}{3{,}4}\ p$, avec la courbe de la figure n° 11 donne $h \sim 3$ mm. C'est l'épaisseur du liquide pour laquelle la surface libre est plane. Ce résultat est en accord avec les observations expérimentales.

L'étude théorique de la réponse linéaire, en régime stationnaire, de la surface libre d'un liquide soumis à une convection conduite à la fois par des forces de gravité $\vec{g}\delta\rho$ et des forces de Marangoni $\vec{\nabla}\alpha$ a permis de montrer l'existance d'une compétition entre ces deux forces vis-à-vis du sens de la déformation de la surface libre (Voir Tableau II).

* Sens de la déformation de la surface libre

Les constantes $\delta\alpha = (\frac{\partial\alpha}{\partial T})\delta T$; $\delta\rho = (\frac{\partial\rho}{\partial T})\delta T$; et g figurent dans les conditions d'équilibre sous la forme du rapport $\frac{\delta\alpha}{g\delta\rho}$. Nous avons vu que ce rapport a les dimensions du carré d'une longueur, et nous avons appelé la longueur $\lambda_T = (\frac{\delta\alpha}{g\delta\rho})^{1/2}$ la "longueur capillaire thermique" du fluide, par analogie avec sa "longueur capillaire mécanique" λ_c $\left[\lambda_c = (\frac{\alpha}{\rho g})^{1/2}\right]$. Ainsi donc, la forme de la surface du fluide vis-à-vis du flux ascendant convectif est déterminée par cette seule quantité.

Si la longueur capillaire thermique est grande devant la hauteur du fluide, on pourra faire abstraction du champ de pesanteur pour déterminer la

../..

forme de la surface libre. On observera un creux à la verticale du flux ascendant.

Si la longueur capillaire thermique est faible devant la hauteur du fluide, on pourra au contraire faire abstraction des forces en surface pour déterminer la forme de la surface libre. On observera une bosse à la verticale du flux ascendant.

Ainsi, dans un problème de thermo-convection avec force de Marangoni, la "longueur capillaire thermique" caractérise la compétition des deux forces en présence pour déterminer le sens suivant lequel, la surface libre va se déformer. La situation est résumée dans le tableau III.

* Amplitude de la déformation

La tension superficielle de la surface libre ne serait être étrangère dans le calcul de l'amplitude de la déformation. On se doute bien que si la tension superficielle du fluide est faible , la déformation de sa surface libre sera grande et inversement.

L'étude a montré que pour obtenir une forte amplitude, c'est-à-dire une réponse importante - avec toujours l'hypothèse que $\bar{\xi}_1 < h_1$ - il faut satisfaire a deux conditions qui sont :

. $h_1 < \lambda_T$ → la hauteur du fluide doit être plus petite que sa longueur capillaire thermique. La convection est alors commandée essentiellement par les forces de Marangoni.

. $h_1 \ll \lambda_c$ → la hauteur du fluide doit être beaucoup plus petite que sa longueur capillaire mécanique. La déformation de la surface libre est alors essentiellement gouvernée par les forces capillaires dans le champ de pesanteur.

Dans ces conditions, l'amplitude de la déformation s'exprime à l'aide d'une expression très simple égale à :

$$\bar{\xi}_1 \cong -\frac{3}{2}\,\frac{|\delta\alpha_1|}{\alpha_1}\,\frac{1}{k^2 h_1} = -\frac{3}{2}\,\frac{|\vec{\nabla}\alpha_1|}{\alpha_1}\,\frac{1}{k^3 h_1} \qquad (20)$$

avec $|\delta\alpha_1| = \left|\frac{\partial\alpha_1}{\partial T_1}\right| \delta T_1$ et $h_1 \ll p$

../..

On constate (figure 12) que l'amplitude $|\overline{\xi}_1|$ est importante.

L'influence de la tension superficielle sur l'amplitude de la déformation de la surface libre se voit clairement avec l'équation (20). Une tension superficielle faible associée avec un fluide ayant des propriétés filmogènes importantes serait donc un dispositif répondant fortement à une perturbation thermique extérieure de faible niveau. L'utilisation d'un système bicouche, c'est-à-dire constitué par deux fluides superposés peut satisfaire, dans certaines conditions, à ce souhait. Nous allons étudier au chapitre suivant la déformation des interfaces d'un tel système lorsqu'il est soumis à une perturbation thermique extérieure.

IV - ETUDE DE LA REPONSE DES INTERFACES D'UN SYSTEME BICOUCHE SOUMIS A UNE PERTURBATION THERMIQUE SPATIALEMENT PERIODIQUE.

A) Introduction

On étudie maintenant une situation nouvelle qui a conduit à une application technique (la visualisation d'images infrarouges), grâce à la simplicité du montage et à la grande sensibilité thermique. On utilise dans ce but, l'effet Marangoni comme étudié précèdemment, pour contrôler la position en altitude d'une interface liquide-liquide en l'absence d'un quelconque mécanisme d'instabilité.

Ce nouveau système est constitué ici par la superposition de deux couches liquides constituant ainsi un système diphasique dont on étudiera les propriétés physico-chimique dans le chapitre suivant. L'interface entre l'air et le fluide supérieur est soumise à une fluctuation de température, dans une mince pellicule située en son sommet. Cette fluctuation de température est obtenue à l'aide d'un rayonnement absorbé, focalisé sur la surface libre supérieure. Il apparaît alors un effet Marangoni, induisant une convection dans les fluides et une déflection des interfaces. Nous allons montrer, dans ce paragraphe que les déformations de l'interface liquide-liquide, obtenues par couplage hydrodynamique dans la couche supérieure, amplifient les déformations de la surface libre. On obtient donc un système beaucoup plus sensible, l'épaisseur de la couche supérieure du système bicouche étant évidemment égale à celle d'un système monocouche.

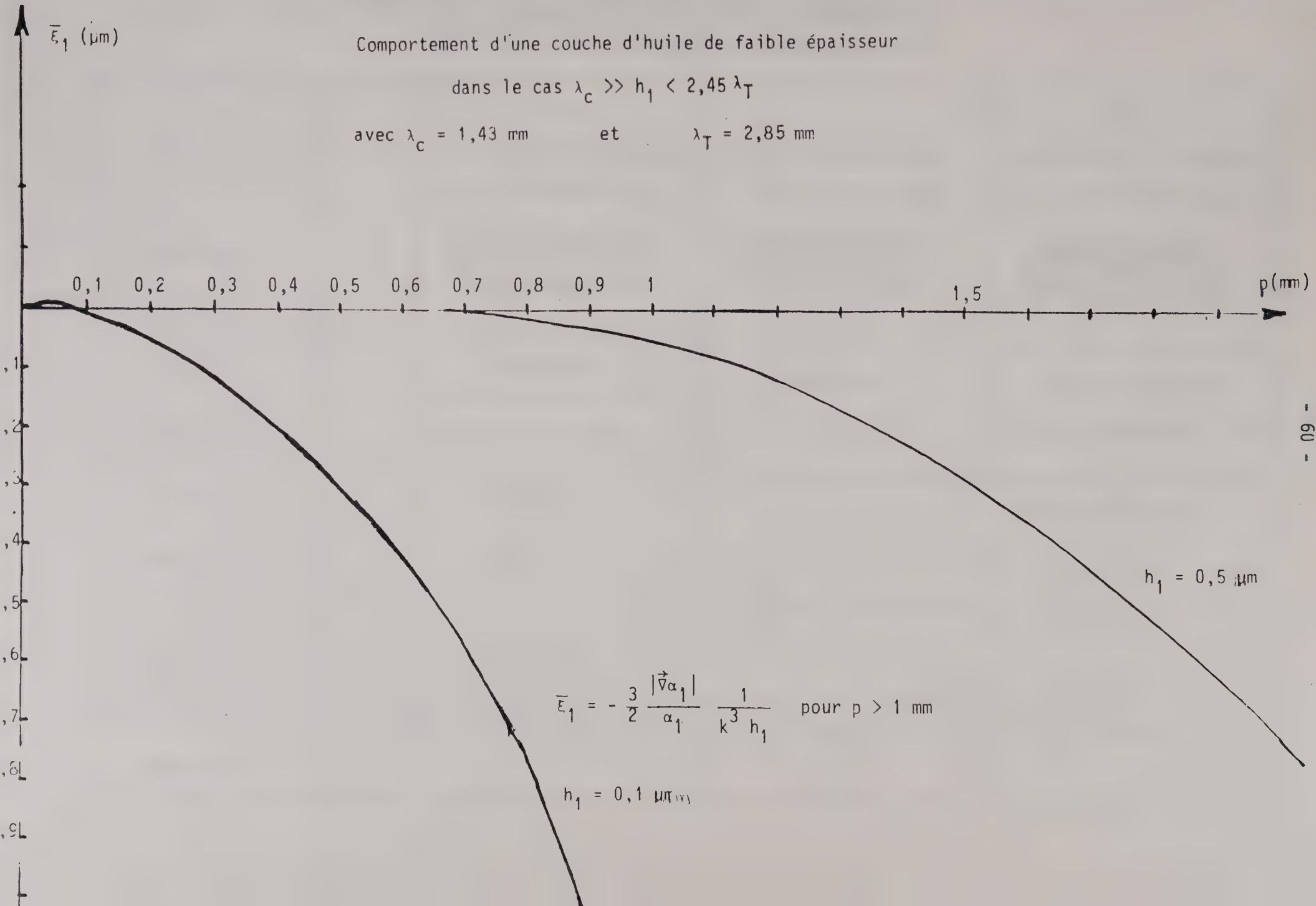
L'étude Théorique est décrite en détail dans l'article qui suit.

Figure 12

Comportement d'une couche d'huile de faible épaisseur

dans le cas $\lambda_c \gg h_1 < 2{,}45\,\lambda_T$

avec λ_c = 1,43 mm et λ_T = 2,85 mm



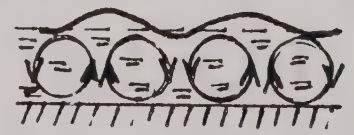
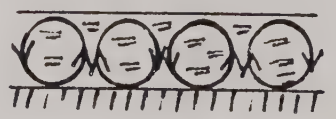
Valeurs du pas	$p \to 0$	$0 < p < 7{,}8$ mm	$p = 7{,}8$ mm	$p > 7{,}8$ mm
Signe de $\overline{\xi}_1$	$\overline{\xi}_1 > 0$	$\overline{\xi}_1 > 0$		$\overline{\xi}_1 < 0$
Comportement de $\overline{\xi}_1$	$\overline{\xi}_1 \to 0$	$\overline{\xi}_1$ passe par un maximum	$\overline{\xi}_1 = 0$	$\overline{\xi}_1$ prend une valeur importante
Importance des forces		La gravité est plus importante que la force de Marangoni.	les deux forces se compensent	La force de Marangoni joue le rôle prédominant.
Aspects de la surface libre		 Le flux ascendant donne une bosse pour la surface libre	 pas de déformation de la surface libre	le flux ascendant donne un creux pour la surface libre

Tableau III - Comportement de la surface libre d'une couche mince liquide de 3 mm d'épaisseur en fonction de p.

$\lambda_C = 1{,}43$ mm $\qquad\qquad$ $\lambda_T = 2{,}85$ mm

B - Interface deflections induced by the Marangoni effect : an application to infrared-visible image conversion.

281——w.b.

J. Phys. D: Appl. Phys., 14 (1981) 000–00. Printed in Great Britain

Interface deflections induced by the Marangoni effect: an application to infrared–visible image conversion

J C Loulergue†, P Manneville and Y Pomeau‡
CEN-Saclay, Service de Physique du Solide et Résonance Magnétique, BP2, 91190 Gif-sur-Yvette, France

Received 18 March 1981

Abstract. We consider a system of two superposed fluid layers F_1 and F_2 and we study the linear response of the air-F_1 and F_1–F_2 interfaces to a modulation of the surface tension at the air–F_1 interface due to inhomogeneous heating by infrared radiation. The deflection of the F_1–F_2 interface is shown to be strongly enhanced relative to that of the air–F_1 interface. Making this deflection visible is the principle of a very sensitive IR–visible image converter.

1. Introduction

Surface tension effects have already attracted much attention, mainly because they are the driving mechanism of a large class of instabilities (see for example Normand *et al* 1977) which may have crucial consequences in practical problems such as evaporative convection or solidification. Here we examine a situation which has led to a technical application and where for the purpose of producing a visible image, surface tension effects are used to control the position of an interface in the absence of any instability mechanism (Loulergue *et al* 1978).

We consider a vessel containing two superposed fluids in a constant gravity field and subjected to a modulation of the surface tension at the interface between air and the upper fluid. This modulation can have different physico-chemical origins. In the application we have in view, it is produced by fluctuations of the surface temperature, induced by infrared absorption in a thin skin at the top of the upper fluid. Tractions due to this modulation (Marangoni effect) result in motion of the fluids and deflection of the interfaces. This deflection is in turn made visible by some optical systems, giving the principle of an infrared image converter. In this article we develop a theoretical approach to the hydrodynamic facet of this system. In §2 we discuss the approximations which make the problem more tractable. In §3 we recall the expression of boundary conditions at a fluid interface in the presence of surface tension variations. Then we present the calculation in some detail (§4). A system with only one fluid may look much less complicated than the present one; in §5 we shall present some of the advantages of the two fluids system for applications and discuss possible developments.

† Permanent address: Institut d'Optique Théorique et Appliquée, Université de Paris-Sud, BP 43, 91406 Orsay, France
‡ Permanent address: DPh-T, CEN-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

0022-3727/81/000000+00 $01.50 © 1981 The Institute of Physics

2. General formulation and approximations

The theoretical problem is to discover the detailed response of the system to the primary cause of the surface tension modulation—here IR absorption of radiation. The solution is in fact quite complicated and we shall make a certain number of simplifying assumptions in order to make the problem more tractable while retaining most of the physics.

First of all we shall take the surface tension modulation as a boundary condition. We shall neglect the dynamics of the physical quantity which produces the modulation—here the equation governing the temperature field, i.e. the detailed process of generation, diffusion and convection of heat. Thus fluid motions will be described by Navier–Stokes equations in the usual form for incompressible fluids.

In the limit case considered in this paper (small perturbations) one may consistently take the temperature field at the interface as given, this field being the result of a balance between the non-uniform heating and the tendency to uniformity due to molecular heat conduction. The calculation of this sort of thing is elementary and is not reproduced below. If the convection current were substantially large, one should include the convective part of the heat transfer. This is a rather difficult task that we shall not consider here.

Secondly, we shall restrict ourselves to the static response under DC excitation and neglect transients, although they can be important for applications. This is consistent with the first assumption since it would be meaningless to study time-dependent regimes without including the dynamics of the generation process.

Finally, we shall neglect nonlinearities and search the linear response of the system to an infinitesimal excitation. The most obvious nonlinearities lie in the advection term of the Navier–Stokes equations but when the curvature of the interfaces becomes large boundary conditions also contribute to nonlinearities. In the following we shall retain only terms of first order in the hydrodynamic variables and interface displacements.

We now specify the geometry (figure 1). Fluid F_i ($i=1, 2$) of density ρ_i and viscosity η_i has height h_i much smaller than the lateral extent l of the vessel. We take the z axis along the vertical and the origin at the position of the unperturbed interface I_{12} between F_1 and F_2. Moreover we assume a temperature perturbation ΔT at the interface I_{a1} between air and fluid F_1 periodic in the x direction and independent of y, x and y being the horizontal cartesian coordinates:

$$T = \Delta \tilde{T} \exp(ikx)$$

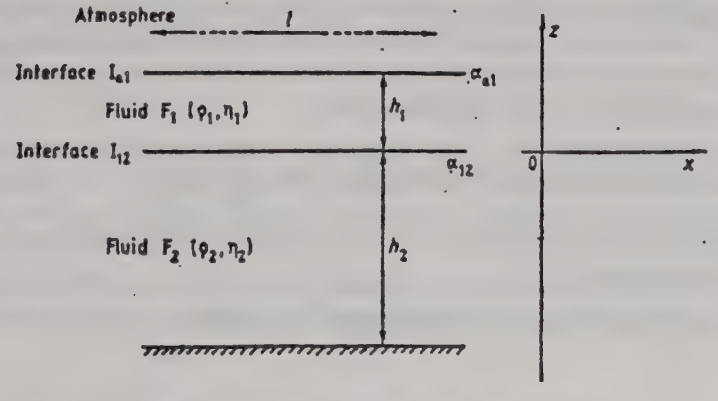


Figure 1. General description: for definitions see the text.

($k=2\pi/\lambda$ is the wave-vector of the perturbation with wavelength λ). As usual for linear problems, more general excitations can be decomposed in such modes and the total response is a superposition of individual responses for each mode.

We shall denote α_{s1} and ξ_{s1} the surface tension and interface deflection at I_{s1} and similarly α_{12}, ξ_{12} at interface I_{12}. The problem being two-dimensional in the (x, z) plane there is no velocity component in the y direction and we shall denote u_i and w_i $(i=1, 2)$ the horizontal (x) and vertical (z) velocity components in each fluid; p_i will be the pressure.

The calculation of the static linear susceptibilities of the system:

$$\xi_{s1}=\chi_{s1}(k)\,\overline{\Delta T}$$

$$\xi_{12}=\chi_{12}(k)\,\overline{\Delta T}$$

is quite straightforward. It mainly involves two steps; the first is to solve completely the velocity field taking into account boundary conditions, the second is to derive the pressure field and from it the position of the interfaces. Before we develop this calculation let us recall the expression of boundary conditions at a fluid interface in the presence of surface tension modulations.

3. Boundary conditions

As is well known, boundary conditions in fluid dynamics account for the continuity of velocity and stresses. At a solid wall which resists stress there is only one condition left, the usual no-slip condition which will hold at the bottom of the vessel. Thus $u_2\,(z=-h_2)=w_2\,(z=-h_2)=0$. Other boundary conditions describe the fluid interfaces between air and fluid F_1 and between F_1 and F_2. Strictly speaking these conditions should be written in a local frame linked to the actual position of the interface, i.e. decomposed on the normal to the interface and the tangent plane. However, in the linear approximation they can be reduced to their expression written in the original reference frame and calculated at the position of the unperturbed interfaces. For example, continuity of the velocity components read:

$$w_1\,(z=0)=w_2\,(z=0)=0 \qquad (1a, b)$$

$$w_1\,(z=h_1)=0 \qquad (1c)$$

which describe the impenetrability of the steady interfaces and

$$u_1\,(z=0)=u_2\,(z=0). \qquad (2)$$

No similar condition is added at $z=h_1$ if one neglects motion in air. Continuity of the normal stresses generalises the Laplace law of capillarity (see for example Landau and Lifshitz 1959). Denoting by subscript n the normal oriented from fluid (j) toward (i) and counting the principal curvature radii R_1, R_2 positive when concavity is directed towards the fluid (i), equilibrium of the interface reads

$$(p_i-\sigma_{nn}^{(i)})\,|_{int}=(p_j-\sigma_{nn}^{(j)})\,|_{int}+\alpha_{ij}\left(\frac{1}{R_1}+\frac{1}{R_2}\right)$$

where σ is the viscous contribution to the stress tensor. Neglecting motion in air at the upper interface one gets

$$p_a=[p_1-2\eta_1\,(\partial w_1/\partial z)]\,|_{z=h_1}+\alpha_{s1}\,(\partial^2\xi_{s1}/\partial x^2) \qquad (3)$$

—and at the lower interface

$$[p_1 - 2\eta_1 (\partial w_1/\partial z)]|_{z=0} = [p_2 - 2\eta_2 (\partial w_2/\partial z)]|_{z=0} + \alpha_{12} (\partial^2 \xi_{12}/\partial x^2). \quad (4)$$

Continuity of the tangential stresses involves the supplementary tractions due to the variation of the surface tension (Marangoni effect). Denoting by subscript t the tangent and ζ being the corresponding coordinate, the tangential equilibrium of stresses reads

$$(\sigma_{tn}^{(1)} - \sigma_{tn}^{(2)})|_{int} + \partial \alpha_{ij}/\partial \zeta = 0$$

(t and n denoting tangential and normal directions respectively), which leads to the two last boundary conditions .

$$\eta_1 (\partial u_1/\partial z)|_{z=h_1} = -\beta (\partial T/\partial x) \qquad \beta = -\partial \alpha_{s1}/\partial T > 0 \quad (5)$$

$$\eta_1 (\partial u_1/\partial z)|_{z=0} = \eta_2 (\partial u_2/\partial z)|_{z=0}. \quad (6)$$

(In order to simplify these conditions, we have made use of the fact that $\partial w_i/\partial x = 0$ at $z=0$, due to the condition $w_i = 0$ at $z=0$.)

4. Determination of the interface susceptibilities

4.1. Determination of the velocity fields

Linearised time-dependent Navier–Stokes equations for the bidimensional geometry read.

$$-\partial_x p_i + \eta_i (\partial_{xx}^2 + \partial_{zz}^2) u_i = 0 \quad (7)$$

$$-\partial_z p_i + \eta_i (\partial_{xx}^2 + \partial_{zz}^2) w_i - \rho_i g = 0 \quad (8)$$

to which we add the continuity equation for incompressible fluids div $v = 0$, that is to say

$$\partial_x u_i + \partial_z w_i = 0. \quad (9)$$

As regards the horizontal dependence of the velocity components one easily sees from the boundary condition (5) that u_i is in phase with $\partial T/\partial x$ and from the continuity equation (9) that w_i is in phase with $\partial_x u_i$ so that if we take ΔT of the form

$$\Delta T \times \overline{\Delta T} \sin kx$$

we shall find

$$u_i = \tilde{u}_i(z) \cos kx$$

$$w_i = \tilde{w}_i(z) \sin kx$$

$\tilde{u}_i(z)$ and $\tilde{w}_i(z)$ being still unknown functions of one variable z to be determined from equations (5)–(7) and boundary conditions. Elimination of the pressure p_i and the velocity component u_i leads to

$$(\partial_{zz}^2 - k^2)^3 \tilde{w}_i(z) = 0$$

so that $\tilde{w}_i(z)$ is a combination of $\exp(\pm kz)$ and $z \exp(\pm kz)$ introducing eight unknown constants. In order to simplify the calculation a little we shall assume $h_2 \gg h_1$ and an excitation, the wavelength of which is of the order of magnitude of the height h_1 of the upper fluid.

The assumption that fluid 2 is semi-infinite is quite reasonable for the technical application which has been developed. Corrections to this approximation are exponen-

tially small, of the form $\exp(-2k\,h_2)$. It is easily seen that $\bar{w}_1$ and $\bar{w}_2$ are most conveniently written in the form:

$$\bar{w}_1=(A_1+B_1\,z/h_1)\cosh(kz)+(C_1+D_1\,z/h_1)\sinh(kz)$$

$$\bar{w}_2=(A_2+B_2\,z/h_1)\exp(kz)$$

z being negative in fluid F_2. w_2 is then just a damped response to the flow in F_1.

Denoting $\kappa=kh_1$, $C=\cosh(\kappa)$, $S=\sinh(\kappa)$ boundary conditions (1) on w_1 and w_2 give:

$$A_1=A_2=0\,.$$

$$B_1C+(C_1+D_1)S=0. \tag{10}$$

Replacing w_i in the continuity equations one easily deduces

$$u_i=\bar{u}_i\cos kx$$

with

$$\bar{u}_1(z)=(1/\kappa)\{[B_1+\kappa(C_1+D_1\,z/h_1)]\cosh(\kappa z/h_1)+(D_1+B_1\,\kappa z/h_1)\sinh(\kappa z/h_1)\}$$

$$\bar{u}_2(z)=(1/\kappa)B_2(1+\kappa z/h_1)\exp(\kappa z/h_1).$$

Continuity of the horizontal velocity at $z=0$, equation (2) gives

$$B_2=B_1+\kappa C_1 \tag{11}$$

and continuity of the tangential stress, equation (6), gives

$$\eta_1 D_1=\eta_2 D_2. \tag{12}$$

At the upper interface the boundary condition (5) reads

$$B_1S+D_1C=-\beta(\kappa\overline{\Delta T}/2\eta_1)=-A \tag{13}$$

after simplification using equation (10).

Elimination of B_2 leads to a system of three equations (10, 12, 13) with three unknowns B_1, C_1, D_1, nonhomogeneous due to the source term A in equation (13).

Solving this system ends the first step, Only C_1 will be needed below.

$$C_1=A(S+\eta_{1/2}C)/[S(C+\eta_{1/2}S)-\kappa] \tag{14}$$

where $\eta_{1/2}=\eta_1/\eta_2$ can have two interesting limits:

$\eta_{1/2}\to 0$ $\quad$ $\eta_2\to+\infty$ $\quad$ fluid 2 behaves as a rigid wall

$\eta_{1/2}\to\infty$ $\quad$ $\eta_2\to\infty$ $\quad$ 'stress-free' boundary condition.

We have now to determine the pressure field from the Navier–Stokes equation (8) and the position ξ_{ij} of the two interfaces using equations (3) and (4).

In the upper fluid the pressure is

$$p_1=p_a+\rho_1 g(h_1-z)+(2\eta_1/h_1)\sin(kx)\,[D_1\sin h(\kappa z/h_1)+B_1\cos h(\kappa z/h_1)].$$

The interface deflection $\xi_{a1}=\bar{\xi}_{a1}\sin(kx)$ has an amplitude

$$\bar{\xi}_{a1}=-\frac{2\eta_1}{h_1}\,\frac{\kappa(C_1C-A)}{(\rho_1 g+\alpha_{a1}k^2)}.$$

We define the capillary length

$$\lambda_{a1}=(\alpha_{a1}/\rho_1 g)^{1/2}$$

and its dimensionless expression in units of h_1

$$\Lambda_{a1}=\lambda_{a1}/h_1.$$

Then

$$\bar{\xi}_{a1}=\left(-\frac{\beta\overline{\Delta T}}{\rho_1 g h_1}\right)\left(\frac{\eta_{1/2}+\kappa}{S(C+\eta_{1/2}S)-\kappa}\right)\left(\frac{\kappa^2}{1+\kappa^2\Lambda_{a1}{}^2}\right). \tag{15}$$

To obtain the response of the one-fluid system it suffices to set $\eta_{1/2}=0$ in expression (15) above since then fluid F_2 plays the role of a rigid wall. Thus

$$\bar{\xi}_{a1}=\left(-\frac{\beta\Delta T}{\rho_1 g h_1}\right)\left(\frac{\kappa}{SC-\kappa}\right)\left(\frac{\kappa^2}{1+\kappa^2\Lambda_{a1}{}^2}\right) \tag{15a}$$

which could have been derived directly.

In the same way

$$p_2=p_a+\rho_1 g h_1-\rho_2 g z+(2\eta_2/h_1)B_2\sin(kx)\exp(kz/h_1)$$

(one should have $h_1+\xi_{a1}(x)$ instead of h_1 but it is found that $\xi_{12}\gg\xi_{a1}$, making this correction negligible).

Equilibrium of the F_1–F_2 interface gives $\xi_{12}=\bar{\xi}_{12}\sin kx$ with an amplitude

$$\bar{\xi}_{12}=2\eta_1\kappa C_1/[(\rho_2-\rho_1)g+k^2\alpha_{12}].$$

The capillary length relevant to this interface is

$$\Lambda_{12}=\frac{1}{h_1}\left(\frac{\alpha_{12}}{(\rho_2-\rho_1)g}\right)^{1/2}$$

and the complete expression of $\bar{\xi}_{12}$ is

$$\xi_{12}=\left(\frac{\beta\overline{\Delta T}}{(\rho_2-\rho_1)g h_1}\right)\left(\frac{S+\eta_{1/2}C}{S(C+\eta_{1/2})-\kappa}\right)\left(\frac{\kappa_2}{1+\kappa^2\Lambda_{12}{}^2}\right) \tag{16}$$

or in nondimensional form:

$$\Xi_{12}=\frac{\bar{\xi}_{12}}{h_1}\frac{\alpha_{12}}{\beta\overline{\Delta T}}=\left(\frac{S+\eta_{12}C}{S(C+\eta_{1/2}S)-\kappa}\right)\left(\frac{\kappa^2\Lambda_{12}{}^2}{1+\kappa^2\Lambda_{12}{}^2}\right). \tag{16a}$$

Figure 2 shows Ξ_{12} as a function of the reduced wave-vector κ for different values of $\eta_{1/2}$ and Λ_{12}.

5. Discussion

In this section we examine the main features of the interface susceptibilities which are relevant for applications, comparing the behaviour of the two interfaces and stressing the advantages of the two-fluid system. Then we present the actual technical set-up and the experimental conditions and we briefly discuss the possible use of the configuration for the purpose of making visible the fluid flow.

Let us first consider the question of the sign of the responses and give a qualitative argument explaining the direction of displacement of the two interfaces (figure 3).

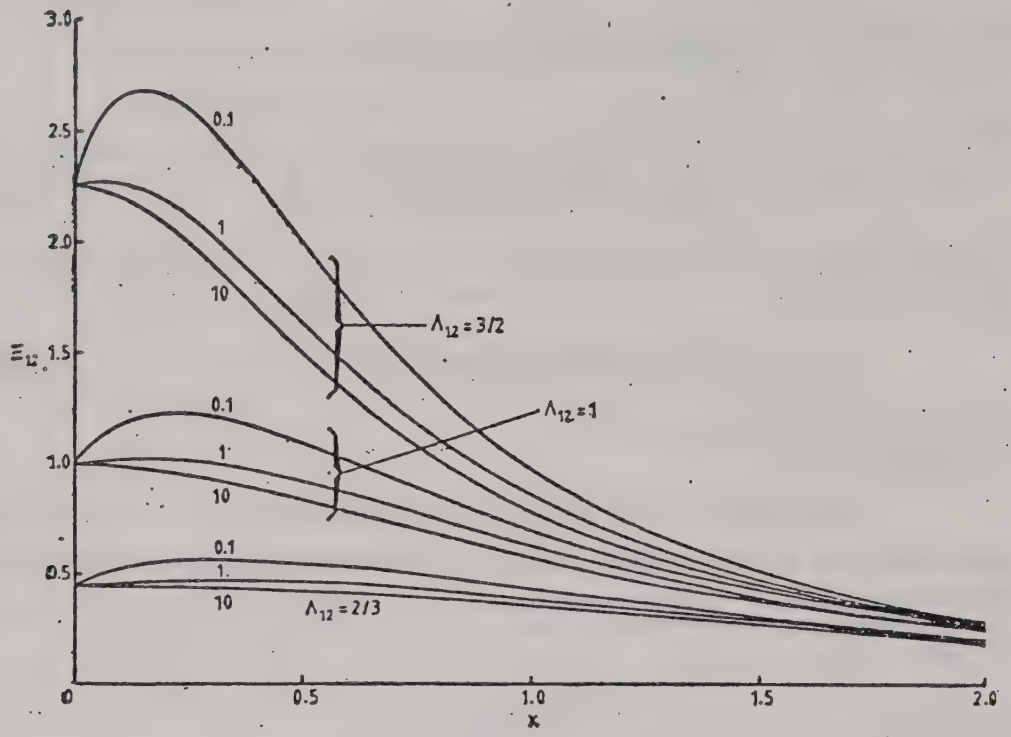


Figure 2. Normalised interface displacement Ξ_{12} as a function of the reduced wave-vector $\kappa=kh_1$ for three values of the capillary length $\Lambda_{12}=2/3$, 1 and 3/2 and three values of the ratio $\eta_{1/2}=\eta_1/\eta_2$; $\eta_{1/2}=0.1$ (fluid F_2 acts nearly as a rigid boundary), $\eta_{1/2}=1$ and $\eta_{1/2}=10$ (F_2 acts as a free boundary).

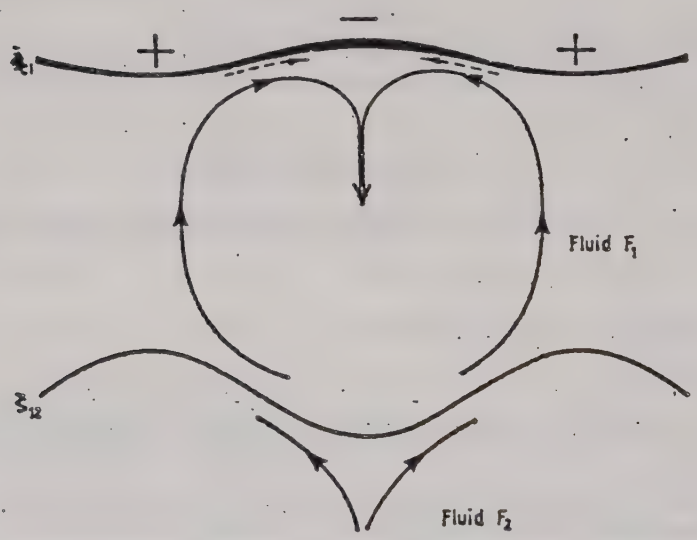


Figure 3. Qualitative description of the response of the system. The + sign denotes the hot regions where IR radiation is concentrated. The subsequent modulation of the surface tension is suggested by the variable width of the line at the upper interface—thin where it is small, wide where it is large. The dashed arrows just below indicate the direction of tractions induced by this modulation and thicker arrows suggest the motion of the two fluids.

Assume a temperature modulation. Then a portion of the surface which is colder has a higher surface tension since usually $\partial\alpha/\partial T = -\beta < 0$. Thus it tends to contract, dragging the fluid horizontally beneath (Marangoni effect): at a hotter place the surface tends to expand, thus pushing the fluid horizontally which accumulates at cold places where a bump is formed. This explains the phase opposition between ξ_{a1} and ΔT (minus sign in equation (15)). Notice that if the motion was primarily driven by buoyancy forces inside the fluid the situation would be reversed: bumps would be found at hotter places where the fluid is pushed vertically upwards. (The same is true of Bénard convection with the upper interface at air (Bénard 1901, Scriven and Sterling 1964). The Marangoni effect dominates and bumps are found at colder places where the fluid sinks when the thickness of the fluid layer is small (Marangoni number $Ma \sim h^2$ at given temperature gradient). Conversely, buoyancy drives the convection when the thickness is large (Rayleigh number $Ra \sim h^4$).) The response of interface I_{12} can be understood in terms of pressure exerted by fluid F_1. I_{12} is pushed down by the fluid which sinks and drawn up at the place of 'up-welling'. Consequently ξ_{12} is in phase with ΔT and in phase opposition with ξ_{a1}. Motion in the lower fluid is present in order to ensure the continuity of the horizontal stress at the fluid–fluid interface.

We turn now to the relative amplitude of the two interface displacements. In the general case we have

$$r = |\tilde{\xi}_{12}/\tilde{\xi}_{a1}| = \frac{\rho_1}{\rho_1 - \rho_2} \frac{S + \eta_{1/2} C}{K + \rho_{1/2}} \frac{1 + \kappa^2 \Lambda_{a1}^2}{1 + \kappa^2 \Lambda_{12}^2}$$

This (amplification) ratio is obviously a function of the reduced wave-vector $\kappa = kh_1$. When κ is small enough—i.e. $\lambda = 2\pi/k \gg h_1$ but $\lambda \ll h_2$ and $\lambda \ll l$ (the lateral extent) in order that the calculation remains valid—one gets

$$r \sim \rho_1/(\rho_2 - \rho_1)$$

which can be made large enough by choosing fluids of comparable density. At large distances (long wavelengths) gravity is the dominant force and this merely describes a differential manometer effect. At large κ taking into account the definition of the capillary lengths Λ_{a1} and Λ_{12}

$$r = \frac{\alpha_{a1}}{\alpha_{12}} \left(\frac{\eta_1 + \eta_2}{2\eta_2} \right) \exp(\kappa)/\kappa.$$

The first factor describes the amplification one obtains in reducing the interfacial tension between the two fluids and as usual at small distances (short wavelengths) capillarity controls the response of the interfaces. The effect of viscosities contained in the second factor is always weak. This can be checked even in the two extreme cases of stress-free or rigid boundary in returning to the original expressions. The last κ-dependent factor should be considered with some care. The enormous amplification it seems to describe is in fact misleading since it corresponds to a regime where the response is already exponentially small; it simply expresses that $\tilde{\xi}_{a1} \sim \kappa^3 \exp(-2\kappa)$ decreases much more rapidly than $\tilde{\xi}_{12} \sim \kappa^2 \exp(-\kappa)$. The presence of an exponential decay at large wave-vectors is not a surprise since it is the natural behaviour in a problem governed by diffusion (here diffusion of vorticity through viscosity) in a semi-infinite medium excited at a boundary by a periodic condition with an imposed wavelength. The difference between the decay rates comes from a compensation between p_1 and $2\eta_1 \partial w_1/\partial z$ in $\tilde{\xi}_{a1}$ which has no counterpart for $\tilde{\xi}_{12}$ and which corresponds to a kind of image effect due to the presence of the second fluid, or the rigid wall in the case of a single fluid system.

Notice that at the limit of very large wave-vectors the upper fluid can be considered as semi-infinite; then the flow induced by the Marangoni effect is perceptible in a thin layer of thickness $\sim\lambda=2\pi/k$ close to the top interface but the compensation quoted above makes the interface displacement disappear completely in the steady state.

Finally the response of the fluid–fluid interface can be made much larger than that of the air–fluid interface by using fluids of similar mass-densities and low mutual surface tension. It is seen easily that these requirements not only increase the amplification ratio between $\bar{\xi}_{12}$ and $\bar{\xi}_{a1}$ but also enhance the absolute magnitude of the response at the fluid–fluid interface. Indeed at the limit of small wave-vectors one has

$$\bar{\xi}_{12}\to\frac{\beta}{(\rho_2-\rho_1)hg_1}\,\overline{\Delta T}$$

while at the opposite limit κ large:

$$\bar{\xi}_{12}\to\frac{\beta h_1}{\alpha_{12}}\exp(-\kappa)\,\overline{\Delta T}.$$

The general equation (16) is merely a smooth interpolation between these two limiting expressions which takes into account the ambiguous role of the thickness h_1 of the upper fluid layer.

To understand the practical interest of the problem solved, let us consider a concrete application. The principle of the apparatus given in figure 4 is very simple. The conversion from IR to visible light involves total reflection on the fluid–fluid interface corrugated by the fluid motion. Thus the visible beam is not sensitive to the displacement itself but to the curvature of the interface (i.e. the second derivative of $\xi_{12}(x)$ which adds a factor $-k^2$ to the response function calculated in §4). Best results have been obtained with two

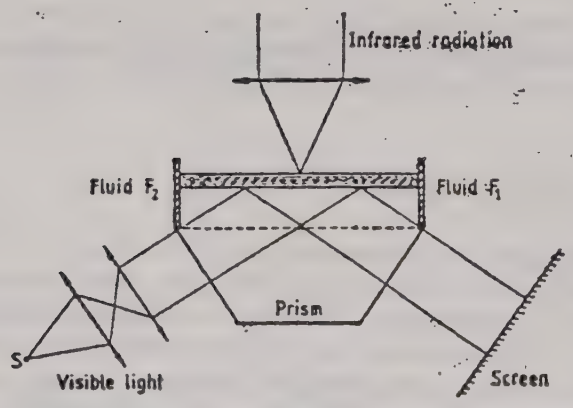


Figure 4. Principle of the technical set-up.

Table 1. Data for fluids used in the apparatus.

Fluid F_i	Concentration at 20°C		Refractive index (line D)	Density ρ_i (g cm^{-3})	Viscosity η_i (P)	Interface	Surface tension
	Si oil	$C_{10}H_7Br$					
F_1 (upper)	79%	21%	1.4335	1.02	0.028	I_{a1}	19.6
F_2 (lower)	5.25%	94.75%	1.6352	1.45	0.050	I_{12}	$\lesssim$0.8

superposed mixtures of silicon oil and monobromonaphthalene ($C_{10}H\ Br$) in equilibrium with each other. Characteristics of these fluids are given in table 1 and it can be seen that the interfacial tension is only 5% of the surface tension at I_{a1}. The amplification at small wave-vectors due to the differential manometer effect is about 2.4 in the present case.

The interpretation of the intensity distribution of light on the screen is not straightforward and involves optical considerations which are beyond the scope of this paper. The actual transfer function of the optical device has not yet been calculated. So we cannot use the apparatus as it stands for a quantitative check of our predictions and special equipment should be designed for this purpose. Qualitatively in agreement with the result derived in §4, the contrast of the image of a grid does present a maximum at wave-vectors which roughly fit the thickness h_1 of the upper fluid and a cut-off at larger wave-vectors. However, in addition to the parameters introduced in our hydrodynamic calculation the position and amplitude of the contrast maximum depend on the distance D to the screen. This is due to the fact that at every wavelength of the temperature perturbation there exists an optimal distance D_{opt} for the convergence of light reflected by the undulated interface, making any direct quantitative comparison impossible. Potential qualities of the system are best shown by figure 5 (plate). It is clear that excellent results can be obtained by adjusting h_1 and D to the typical wavelength present in the IR image which should not vary much for a given class of problems.

As regards a technical application, the most important question which comes after that of sensitivity is that of response times (see da Costa 1981 for the one-fluid system). As already noticed in §2 this problem is much more difficult. Experimentally several phases are observed. First there is a latence time during which nothing seems to happen. It corresponds to the time necessary for a flow generated at the upper surface to reach the interface below. This should be of the order of $\rho_1 h_1^2/\eta_1$ which is $\sim 5\times 10^{-2}$ s for $h_1 \sim 0.1$ mm. Then comes the rise time itself during which the amplitude of the interface displacement grows. Were it not for the convection of heat generated at the surface, this rise time would be of the same order of magnitude. In practice as the flow develops, it is more and more efficient in transporting heat and making the temperature uniform; this tends to limit the excitation level, consequently the rise time is somewhat larger. The stationary state results from a compromise between thermal diffusion and convection and thus the ultimate growth is certainly controlled by the thermal diffusivity $\chi = K/\rho C_p$ (K is the thermal conductivity, C_p the specific heat). The ratio between vorticity diffusivity $\nu = \eta/\rho$ and thermal diffusivity is called the Prandtl number, here typically 50. This means that the thermal diffusion time is 50 times larger than the viscous time, a few seconds in the present case. The decay time is slightly smaller in general since the establishment of a uniform temperature by convection–diffusion no longer works against the growth of the amplitude of the temperature modulation.

A detailed theoretical analysis of transients would certainly help the understanding of the characteristics of the present experimental set-up and perhaps improve the performances.

6. Conclusion

In this paper we have developed the calculation of the linear response of interfaces in a two-fluid system submitted to a surface tension modulation, a configuration which has already shown an interesting application for IR image conversion. We have restricted ourselves to the hydrodynamics of the problem and it is clear that the optical part also

deserves a thorough study (see da Costa and Calatroni 1978, 1979 for the one-fluid system) in order to optimise the design of the set-up. Such a study could in turn have interesting applications for the determination of physical and hydrodynamical quantities at a fluid–fluid interface.

Different situations can be handled in a similar way. For example in order to improve the response one can consider including the effect of a destabilising temperature gradient, since the susceptibility of the system to an excitation which couples with the destabilising mechanism diverges at the instability threshold. This may contribute to the knowledge of surface tension driven instabilities; however, from the technical view-point this may have undesirable effects in favouring a definite spatial pattern, slowing down the response and adding temperature control requirements to an apparatus which is remarkably simple. One can also consider cases where heat is absorbed in the bulk of the fluid or at the bottom of the vessel (Heintz 1946) combining buoyancy and surface tension effects. The Marangoni effect can also have a chemical origin, suggesting the use of surfactants (Ibañez and Velarde 1977, Linde 1978). Finally, other devices based on fluid systems have been considered recently, e.g. a one fluid IR image converter (Mast and La Roche 1971) for which equation (15*a*) may be relevant, a spatial light modulator (Laeri *et al* 1980), and a holographic recording medium (Cornier *et al* 1978) for which a detailed hydrodynamical study similar to the present one is still lacking and would certainly be rewarding.

References

Bénard H 1901 *Ann. Chim. Phys.* 23 62
Cornier M, Blanchard M, Rioux M and Beaulieu R 1978 *Appl. Opt.* 17 3622
da Costa G and Calatroni J 1978 *Appl. Opt.* 17 2381
—— 1979 *Appl. Opt.* 18 233
da Costa G 1981 *Applied Optics to Appear: Real Time Recording of Light Patterns in Heavy Hydrocarbons: A Theoretical Analysis*
Heintz E 1946 *J. Physique* 7 293, 336
Ibañez J L and Velarde M G 1977 *J. Physique* 38 1479
Imbert C, Levy Y, Loulergue J C 1978 ANVAR Patent 78-28041
Laeri F, Schneeberger B and Tschudi T 1980 *Optics Commun.* 34 23
Landau L and Lifshitz E 1959 *Fluid Mechanics* (New York: Addison Wesley)
Linde H 1980 *Physico Chemical Hydrodynamics 3* (*PCH 80, Madrid 1980*) ed. M G Verlarde Europhysics Conf. Abstr. Vol. 3F p202
Loulergue J C, Pomeau Y, Levy Y 1978 *Proc. ICO 11 Conf.* Madrid, *1978* p775
Mast F and La Roche U 1971 *Proc. Int. Electro-Optical Design Conf., Brighton*
Normand C, Pomeau Y and Velarde M G 1977 *Rev. Mod. Phys.* 49 581
Scriven L E and Sterling C V 1964 *J. Fluid Mech.* 19 321

J. Phys. D: Appl. Phys., 14 (1981)—*J C Loulergue, P Manneville and Y Pomeau* (see pp 000–0)

Figure 5. Photograph of a man in absolute darkness. His hands in his pockets, which would not be distinguished in visible light can clearly be seen in IR light. This is only due to the slight temperature difference between neighbouring parts of the trouxers. The apparatus is sensitive to IR intensity differences and in more general cases the formation of an image results from the temperature and emissivity gradients on the subject.

C) Discussion Générale sur le système bicouche

1) Comportement de l'amplitude de la déformation de l'interface liquide-liquide en fonction de la longueur d'onde de la perturbation thermique.

L'expression (16) de l'article précédent donne l'amplitude de la déformation :

$$\overline{\xi}_{12} = \frac{-\left(\frac{\partial \alpha a_1}{\partial T_1}\right) \delta T_1}{g \Delta \rho h_1} \quad \frac{\delta_o^2}{1 + k^2 \lambda_{12}^2} \quad \frac{S + \varepsilon C}{S(C + \varepsilon) - \delta_o} \qquad (21)$$

1 se rapport à la solution supérieure

2 se rapporte à la solution inférieure

αa_1 est la tension superficielle de la surface libre du système.

$\Delta\rho = \rho_2 - \rho_1$ la différence des masses volumiques des deux solutions superposées.

$\varepsilon = \frac{\eta 1}{\eta 2}$ le rapport des viscosités.

Typiquement l'épaisseur de la couche supérieure est de l'ordre de 100 µm. Si on prend comme liquides ceux dont les caractéristiques physico-chimique sont données dans l'article, on obtient les valeurs suivantes :

Longueur capillaire de l'interface I_{12} :

$$\lambda_{12}^2 = \frac{\alpha_{12}}{\Delta\rho g} \cong \frac{0,8}{0,43 \times 981} \cong 1,9 \cdot 10^{-3} cm^2$$

$$\lambda_{12} = 4,36 \cdot 10^{-2} \text{ cm}$$

$$\varepsilon = \eta 1 / \eta 2 = \frac{\rho_1 \nu_1}{\rho_2 \nu_2} = 0,47$$

"Grosso modo", on s'attend à ce que l'optimum de réponse se fasse pour des rouleaux "circulaire" de diamètre h_1 {15}. La longueur d'onde de la perturbation correspondante est donc $2h_1$.

$$k = \frac{2\pi}{p} = \frac{2\pi}{2h_1} = \frac{\pi}{h_1}$$

.../...

donc :

$$\lambda_{12}^2 k^2 \cong 187 \gg 1$$

La déformation de l'interface liquide-liquide est donc principalement contrôlée par la capillarité.

Dans ces conditions, l'amplitude de la déformation est donnée par :

$$\overline{\xi}_{12} \cong \frac{\alpha'_{a_1}\ \overline{\delta T}_1}{g\Delta\rho\ h_1} \quad \frac{1}{k^2\lambda_{12}^2} \quad \frac{\delta^2{}_o(S + \varepsilon C)}{S(C + \varepsilon) - \delta_o}$$

en posant $-\left(\frac{\partial \alpha a_1}{\partial T_1}\right) = \alpha' a_1$

ou bien encore :

$$\overline{\xi}_{12} = \frac{\alpha' a_1}{\alpha_{12}} \frac{\overline{\delta T}_1}{k^2 h_1} \quad \frac{\delta^2{}_o(S + \varepsilon C)}{S(C + \varepsilon) - \delta_o} \qquad (22)$$

La déformation de l'interface devrait donc être maximum pour $k \cong \frac{\pi}{h_1}$, soit 10 traits/mm avec une couche de 100 µm d'épaisseur. Nous verrons qu'expérimentalement nous n'obtenons qu'une résolution de 5 traits/mm ou bien 2,5 paires de ligne par millimètre.

Deux cas limites sont intéressants :

α) Grande longueur d'onde : $\delta_o = kh_1 \ll 1$ $(p \gg h_1)$

L'amplitude $\overline{\xi}_{12}$ s'exprime très simplement :

$$\overline{\xi}_{12} \cong \frac{\alpha' a_1}{\alpha_{12}} \frac{\overline{\delta T_i}}{k^2 h_1} = \frac{\alpha' a_1}{\alpha_{12}} \frac{\overline{\delta T}_1}{k\delta_o} \qquad (23)$$

A quelle condition peut-on avoir $kh_1 \ll \delta_o$ tout en restant dans un régime ou la déformation est contrôlée par la capillarité ?

Il faut $\delta_o \ll 1$, mais tel que $k^2\lambda^2{}_{12} \gg 1$; cela est possible si $\lambda_{12}^2 \gg h^2{}_1$ $(2 \gg 10^{-1})$, ce qui limite les épaisseurs h_1 de la couche supérieure à un niveau inférieur à 150 µm.

On doit en outre avoir $kh_2 \gg 1$ étant donné que l'on a supposé, dans le calcul, la couche inférieure semi-infinie. Si on prend $h_2 \cong 30h_1$, ce qui est raisonnable au point de vue pratique, cela donne une coupure en k vers les basses fréquences égales à :

$$k_{lim} \sim \frac{1}{h_2} \sim \frac{1}{30h_1} \sim 3mm^{-1}$$

Or on a :

$$h_1 < \lambda_{12} \ll h_2$$

$$0{,}1 < 0{,}43 \ll 3 \text{ mm}$$

Pour $k_{lim} \sim \frac{1}{h_2}$, on obtient donc :

$$k_{lim}^2 \lambda_{12}^2 = \frac{\lambda_{12}^2}{h_2^2} \ll 1$$

Le régime avec $k^2\lambda^2_{12} \gg 1$ et $kh_1 = \delta_o \ll 1$ existe donc bien. L'expression (23) est donc utilisable. On constate que l'amplitude s'exprime sous une forme particulièrement simple et que si la tension interfaciale α_{12} est très faible, on obtient une très forte déformation de l'interface.

Donc, avec une couche supérieure qui ne dépasserait pas 150 µm d'épaisseur, on aurait une forte amplitude de déformation de l'interface, que l'on peut calculer avec l'expression (23) à condition que le vecteur d'onde de la perturbation soit compris entre les limites suivantes :

$$10 \text{ traits/cm} < k < 50 \text{ traits/cm}$$

$$1 \text{ mm} > p > 200 \text{ µm}$$

. Calcul de $\bar{\xi}_{12}$ pour des rouleaux circulaires avec une couche de 100 µm l'équation (22) donne:

$$\bar{\xi}_{12} = 1 \text{ µm} \qquad \text{pour } \overline{\delta T} = 10^{-1} \text{ °C}$$

On aurait trouvé, avec une monocouche utilisant le même liquide et la même épaisseur une amplitude $\bar{\xi}_1$ égale à $\frac{1}{25}$ µm seulement, en prenant comme tension superficielle du fluide une valeur égale à 20 dyne/cm.

On obtient donc un gain appréciable en réponse, en utilisant une interface liquide-liquide, au lieu d'une simple couche.

β) Petite longueur d'onde $\delta_o = kh_1 \gg 1 \qquad (p \ll h_1)$

Lorsque k est grand, l'amplitude de la déformation de l'interface liquide-liquide s'amortit exponentiellement. En effet :

$$S \cong \frac{1}{2} \exp(\delta_o) \cong C$$

$$\bar{\xi}_{12} = \frac{\alpha a_1 \overline{\delta T}_1 \delta_o^2}{g\Delta\rho\, h_1} \quad \frac{\exp\{\delta(1+\varepsilon)/2\}}{(\exp 2\delta_o)/4} \quad \frac{1}{1+k^2\lambda_{12}^2}$$

et $$\overline{\xi}_{12} \equiv \delta_o^2 \exp(-\delta_o) \to 0$$

Si l'on compare le comportement de $\overline{\xi}_{12}$ avec $\overline{\xi}_1$ aux petites longueurs d'onde, on s'aperçoit que $\overline{\xi}_{12}$ décroît moins rapidement que $\overline{\xi}_1$. Donc, un avantage d'utiliser une interface liquide-liquide est qu'elle passe mieux les petites longueurs d'onde qu'une simple couche, à épaisseur h_1 égale naturellement.

2 - Comportement de l'amplitude $\overline{\xi}_{12}$ en fonction de la viscosité des liquides

Il existe deux limites intéressantes :

a) lame auto-portée : $\varepsilon \to \infty$

$$\overline{\xi}_{12} = \frac{\alpha_{a_1} \overline{\delta T} \delta_o^2}{g \Delta\rho \, h_1} \; \frac{C}{S^2} \; \frac{1}{1 + k^2 \lambda_{12}^2} \qquad (25)$$

b) monocouche sur un solide : $\varepsilon \to 0$

$$\overline{\xi}_{a1} = \frac{\alpha_{a_1} \overline{\delta T} \delta_o^2}{g \Delta\rho \, h_1} \; \frac{S}{SC - \delta_o} \; \frac{1}{1 + k^2 \lambda_{12}^2} \qquad (26)$$

Les résultats obtenus montrent que la déformation est pratiquement indépendante de la viscosité des liquides (cf. courbe figure 13).

3 - Comportement de l'amplitude de l'interface I_{12} en fonction de la constante capillaire

Contrairement à la viscosité, on a un effet très important de la longueur capillaire λ_{12} égale à :

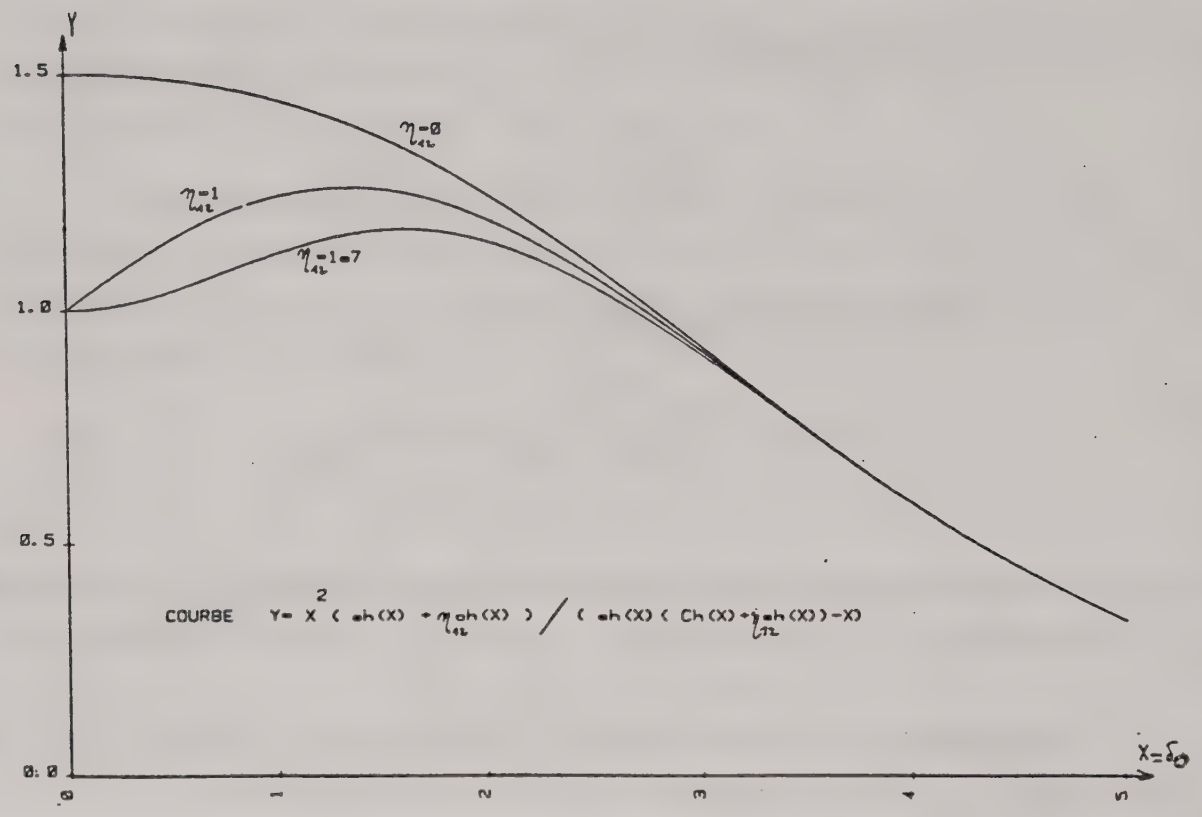
$$\lambda_{12}^2 = \frac{\alpha_{12}}{\Delta\rho g}$$

Les résultats sont représentés par les courbes de la figure 14. A h_1 fixé, on a intérêt à travailler avec une tension interfaciale α_{12} aussi petite que possible.

L'optimum de réponse se situe bien dans la plage de vecteurs d'onde attendue : on a une coupure pour $kh_1 = \delta_o \sim \pi$. Cet optimum se décale vers les grandes longueurs d'onde lorsque la tension interfaciale α_{12} augmente à h_1 donné.

FIGURE 13

Amplitude de la déformation de l'interface liquide-liquide en fonction des viscosités des liquides ($\eta_{12} = \varepsilon = \eta_1/\eta_2$).



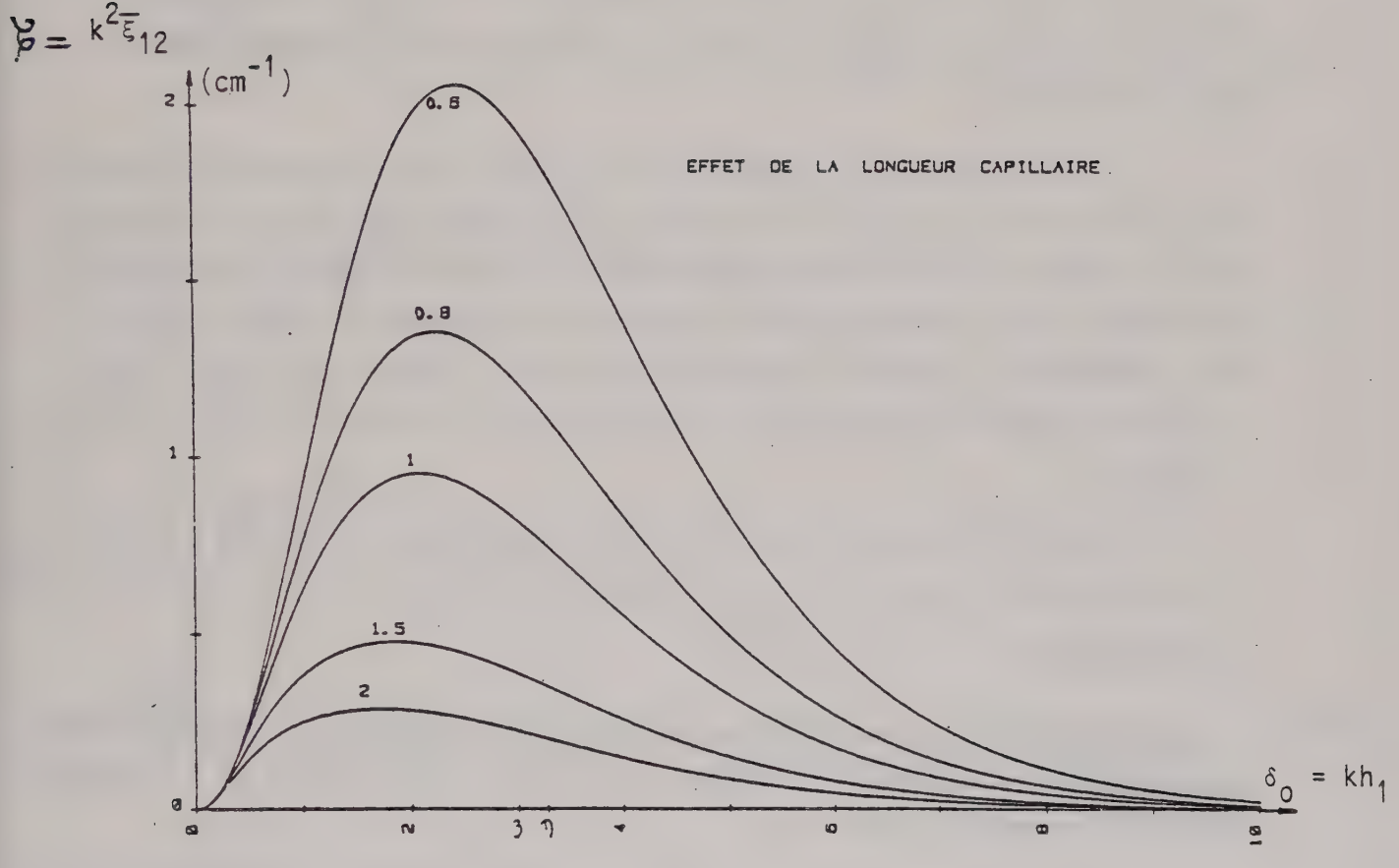
La fonction $y = \dfrac{x^2[\text{sh } x + \varepsilon \text{ch } x]}{\text{shx}(\text{ch } x + \varepsilon \text{sh } x) - x}$

avec $x = \delta_0$ a été calculée en fonction de δ_0 pour 3 valeurs de $\varepsilon = \eta_{12}$

$\eta_{12} = 0$, 1 et 1,7

FIGURE 14

Effet de la longueur capillaire sur la courbure de la déformation de l'interface liquide-liquide



λ_c mm	ρ gcm^{-3}	α dyne cm^{-1}
2	1	39,25
1,5	1	22
1	1	9,8
0,8	1	6,3
0,6	1	3,5

4 - Comportement de la courbure de l'interface en fonction de la longueur d'onde de la perturbation

Nous verrons dans le chapitre V, qu'il est possible de visualiser les déformations de l'interface liquide-liquide, par ombroscopie. Utilisée par réflexion totale sur l'interface, la méthode est sensible à la courbure que prend l'interface lorsqu'elle est déformée. Il est donc intéressant d'étudier le comportement de celle-ci en fonction de la longueur d'onde de la perturbation.

Les résultats sont donnés par les courbes de la figure 15. Les calculs ont été effectués pour deux épaisseurs de la couche supérieure. On constate que la courbure est plus importante lorsque l'épaisseur h_1 est plus petite. Ce résultat était attendu, étant donné que la courbure est proportionnelle à $\bar{\xi}_{12}$. Cependant, on peut remarquer aussi que si l'épaisseur h_1 est faible la courbure devient sensiblement constante dans un large domaine de longueur d'onde.

C'est un résultat important, pour trouver, nous le verrons au chapitre V, une méthode de visualisation des déformations de l'interface liquide-liquide.

D - CONCLUSION

L'usage de la superposition de deux fluides permet, par couplage hydrodynamique dans la couche supérieure, d'amplifier la modulation de l'interface liquide-liquide du système si :

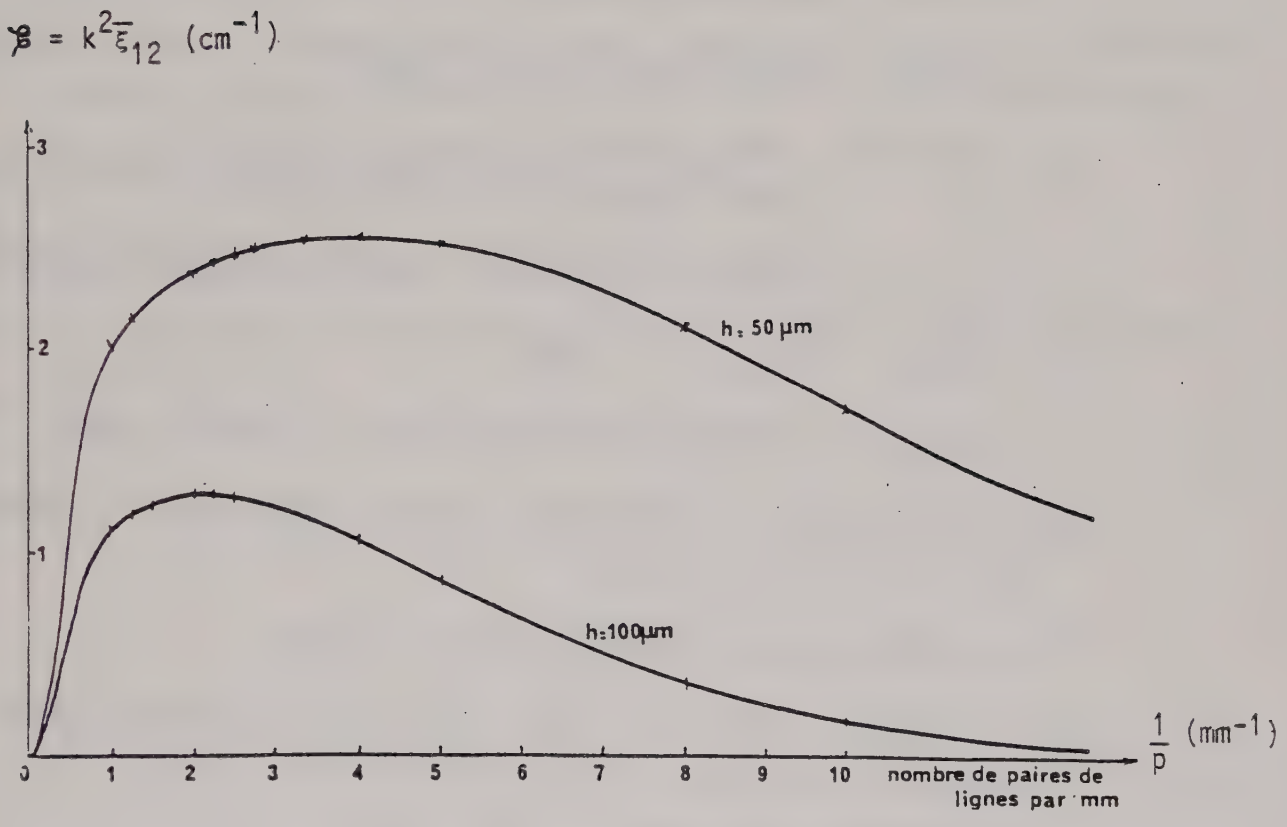
* pour $p > h_1$, on superpose deux fluides tel que la différence entre les masses volumiques soit faible.

* pour $p < h_1$, la tension interfaciale de l'interface séparant les liquides est faible.

Dans ces conditions, on obtient non seulement une amplification de la modulation, mais aussi un accroissement de la réponse de l'interface liquide-liquide.

FIGURE 15

Courbure de l'interface liquide-liquide en fonction du nombre de paires de lignes par mm pour deux épaisseurs de la couche supérieure.



BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE III

{1} H. BENARD - Rev. Gén. des Sciences Pures et Appliquées, 11, 1261 (1900) Ann. Chim. Phys. 25, 62 (1901).

{2} E. HEINTZ - Journal de Physique, t. VII, n° 10 et 11, (1946).

{3} H. LINDE - Z. Physik Chem. 224, 72, (1964).

{4} C. MARANGONI - Nuovo Cimento (2), 5-6, 239, (19871).
Nuovo Cimento (3), 97-193 (1878).

{5} "Cratering of Industrial Coatings", Rapport de DUPONT de NEMOURS (1981).

{6} J. BULOU - Thèse C.N.A.M. (1981).

{7} A. HADNI et R. THOMAS - Thin Solid Films, 81 (1981) 247-256

{8} L.E. SCRIVEN et C.V. STERNLING - "The Marangoni Effects", Nature, V. 187 pp. 186-188, July 16, (1960).

{9} M.J. BLOCK - Nature (Londres) 178, 650, (1956).

{10} P. CERISIER, J. PANTALONI. 4ème International Conference of Physics-Chemical Hydrodynamics 13-17 juin 1982 New-York.

{11} A.V. HERSHEY - Phys. Rev. 56, 204, (1939).

BIBLIOGRAPHIE

{12} Bénard H. 1901 Ann. Chim. Phys. 23, 62
Volkovisky V. 1939 Pub. Sc. Tech. Ministère de l'Air vol. 151.

{13} Berg J.C. A. Acrivos et M. Boudiart 1966, Adv. Chem. Eng. 6, 61

{14} Sciven L.E., C.V. Sternling 1964, J. Fluid Mech. 19, 321

{15} C. Normand, Y. Pomeau, M.G. Velarde. "Convective Instability = A physicist's approach". Reviews of Modern Physics vol. 49, n° 3, July 1977, page 600.

{16} Catalogue Rhône-Poulenc - Rhodorsil huiles.

{17} L. Landau et E. Lifchitz - Editions MIR - page 293.

{18} J. Boussinesq, 1903, Théorie analytique de la Chaleur (Gauthier-Villards), vol. II, p. 172.

CHAPITRE IV

ETUDE PHYSICO-CHIMIQUE

D'UN MELANGE DIPHASIQUE BINAIRE ET TERNAIRE

I - INTRODUCTION

Le but de cette étude physico-chimique est de rechercher un mélange binaire capable de satisfaire simultanément les trois conditions suivantes :

a) donner lieu à un interface liquide-liquide stable et plan ;

b) avoir une tension interfaciale la plus faible possible dans un large domaine de température ;

c) présenter une grande différence d'indices de réfraction et de densités entre les phases coexistantes.

Nous nous sommes donc restreints, dans ce travail, à mélanger des liquides d'indices de réfraction et de densités très différents, pour satisfaire d'abord la troisième condition. Pour obtenir ensuite les deux premières conditions, il est nécessaire de mélanger deux liquides qui soient partiellement miscibles. En effet, lorsque l'on mélange deux liquides, trois cas peuvent se présenter :

α) Les deux liquides ne sont pas miscibles

On obtient alors un système diphasique avec un interface liquide-liquide dont la tension interfaciale est importante. Dans un tube à essais, l'interface est courbe ; par exemple, la tension interfaciale entre l'eau et l'huile est de l'ordre de 35 à 50 dyne cm^{-1}.

β) Les deux liquides sont totalement miscibles

Le mélange est alors monophasique, et il n'y a pas d'interface liquide-liquide. C'est le cas, par exemple, d'un mélange eau plus alcool.

γ) Enfin, les deux liquides sont partiellement miscibles

Ce cas est celui auquel nous nous sommes particulièrement intéressés. On obtient un interface liquide-liquide en général plan dans un tube à essais, avec une tension interfaciale faible dans un large domaine de température et de pression.

La première partie de ce travail est consacrée à l'étude du diagramme de coexistence des phases du mélange binaire composé de bromonaphtalène, plus d'huile SI 200/3.

La seconde partie étudie les tensions superficielles et interfaciales du mélange binaire en fonction de la température.

Enfin, la troisième et dernière partie étudie un système diphasique ternaire, composé du système binaire précédent auquel on ajoute un

.../...

troisième élément, du iodonaphtalène. Ce troisième liquide permet de diminuer la tension interfaciale du mélange binaire, tout en conservant au système les propriétés optiques et hydrodynamiques (viscosités et densités) satisfaisant à la troisième condition.

II - RAPPEL DES PROPRIETES DE LA TENSION SUPERFICIELLE

1. Energie superficielle et tension superficielle

L'accroissement de l'énergie libre G d'un fluide est proportionnel au nombre de molécules à amener en surface, c'est-à-dire à l'accroissement dA de sa surface libre {1}. A température et volume constants, il existe une relation simple en G et A égale à :

$$dG = \alpha\, dA$$

La constante de proportionnalité σ caractérise la nature du fluide ; elle est appelée coefficient de tension superficielle, ou tout simplement tension superficielle du fluide.

Le tableau I donne un exemple de valeurs de σ pour quelques liquides usuels.

L'application du deuxième principe de la thermodynamique relie la chaleur associée à l'augmentation de l'entropie de la surface correspondante :

$$dQ = TdS = TS^S dA$$

avec S^S l'entropie de la surface par unité d'aire et T la température de la surface.

Comme :

$$\left(\frac{\partial G}{\partial T}\right)_V = - S$$

on en déduit que $S^S = - \frac{d\alpha}{dT}$.

$\frac{d\alpha}{dT}$ est en général négatif.

En outre, l'énergie libre est plus grande que l'énergie superficielle E du liquide :

$$G = E - TS$$

soit, par unité d'aire :

.../...

TABLEAU I

Liquides	T°C	α dyne/cm	Liquides	T°C	α dyne/cm
Eau	20	72,88	Méthanol	20	22,50
	25	72,14	Octane	20	21,62
	30	71,40	Ether	25	20,14
Iodure de méthylène	20	67,00	Perfluoro-pentane	20	9,89
Nitrométhane	20	32,66			
Toluène	20	28,52			
Chloroforme	25	26,67	Mercure	20	486,50

D'après A.W. ADAMSON
Physical Chemistry of Surfaces, page 39.

TABLEAU II

Liquides	α à 20°C dyne/cm	dα/dT à 20°C dyne/cm dg
Eau	72,75	- 0,16
Ethanol	22,75	- 0,086
Bromonaphtalène	37,4	- 0,10
Iodonaphtalène	47,1	- 0,10
Iodure de Méthylène	51,9	- 0,16
Huile SI 200/3	18,5	- 0,08

$$E^S = G^S + TS^S$$

En posant :

$$G^S = \left(\frac{\partial G}{\partial A}\right)_{T,V} = \alpha \quad ,$$

on obtient :

$$E^S = \alpha - T\frac{d\alpha}{dT}$$

L'énergie superficielle représente l'apport d'énergie nécessaire pour accroître la surface du fluide.

La tension superficielle est particulièrement sensible à la température et à la composition du milieu (effet Marangoni).

2. Influence de la température

Elle diminue la tension superficielle de la plupart des liquides, comme le montre le tableau II.

Les tensions superficielles (sauf pour l'eau et l'éthanol) ont été mesurées avec une précision de 0,1 dyne/cm. Le paramètre $\frac{d\alpha}{dT}$ est donné par les pentes des courbes $\alpha = f(T)$, qui sont en général des droites {2}. La tension superficielle s'annule à la température critique du fluide.

3. Influence de corps dissous

De très faibles quantités de corps suffisent pour faire chuter, dans de très fortes proportions, la tension superficielle de liquides. Ces corps sont des tensioactifs. Le quotient $\frac{d\alpha}{dc}$, c étant la fraction molaire du corps dissous dans le liquide, est négatif, et sa valeur absolue est grande. Ils sont surtout connus pour l'eau. Par exemple, il suffit d'ajouter 1 gramme d'oléate de sodium (savon) dans un litre d'eau pour diminuer sa tension superficielle de trois-quarts. En général, $-\frac{d\alpha}{dc}$ sera d'autant plus grand que la solubilité du corps sera faible {3}.

4. Conclusion sur la tension superficielle

La tension superficielle des liquides usuels, dans les conditions normales de température et de pression, est rarement inférieure à une dizaine de dynes/cm (c'est-à-dire le dixième de celle de l'eau). Elle diminue un peu avec la température, et beaucoup avec l'usage de tensio-actifs

.../...

surtout connus pour l'eau. Cependant, pour obtenir une tension superficielle beaucoup plus faible, il est nécessaire de modifier la phase en contact avec le liquide, c'est-à-dire qu'il faut utiliser un interface liquide-liquide. Nous allons, dans ce chapitre, étudier un mélange diphasique capable de nous donner une tension interfaciale très inférieure à 1 dyne/cm.

III - ETUDE DU SYSTEME BINAIRE, BROMONAPHTALENE + HUILE SI 200

A - Généralités

1. Mélange monophasique et diphasique

Lorsqu'on mélange deux liquides A et B, on obtient soit un mélange homogène, soit un mélange hétérogène.

α) Mélange homogène

Un mélange homogène ou solution est constitué par une phase liquide unique, contenant deux corps appelés constituants du mélange binaire. Il se fait spontanément grâce à la diffusion, le mécanisme étant semblable à celui des gaz, mais avec un temps plus long. Toute cause qui accroît l'agitation moléculaire accélère la formation du mélange. Cependant, les forces de cohésion moléculaire s'opposent au libre mouvement des molécules. Ainsi, pour que deux corps purs soient miscibles, il est nécessaire que les actions mutuelles de leurs molécules soient supérieures aux forces de cohésion de chacun des deux liquides. C'est le cas, par exemple, des alcools ou des cétones avec l'eau. Ils sont solubles dans l'eau en toutes proportions, à la température ordinaire.

β) Mélange hétérogène

Le mélange de deux liquides donnant lieu à deux phases liquides est un cas de mélange hétérogène. Par exemple, le mercure, les huiles sont des liquides non miscibles avec l'eau, par suite de la grande différence qui existe entre leurs molécules.

Si les deux phases ne sont pas complètement séparées, il y a dispersion de l'une des phases dans l'autre.On obtient soit une solution colloïdale, soit une suspension en émulsion selon la taille des fragments de l'une des phases dans l'autre.

Si les deux phases sont complètement séparées, il existe alors un interface liquide-liquide. C'est ce qui se passe lorsque les deux constituants sont partiellement miscibles. Il est possible, dans certaines conditions,

.../...

d'obtenir un interface avec une tension superficielle très faible. Nous allons tout d'abord étudier en détail les critères pour obtenir cette configuration, puis nous nous intéresserons à la tension interfaciale.

2. Composition des phases d'un mélange binaire diphasique

On définit la composition d'un mélange binaire diphasique par la fraction massique, la fraction volumique, ou la fraction molaire de l'un des constituants dans les deux phases. Ce paramètre est appelé aussi paramètre d'ordre du mélange.

On appelle fraction massique du constituant un, par exemple, dans une des solutions, le rapport de la masse m_1 de ce constituant sur la masse totale du mélange :

$$C_1 = \frac{m_1}{m}$$

avec $m = m_1 + m_2$, la masse totale de ce mélange.

On a de même :

$$C_2 = \frac{m_2}{m}$$

avec $C_1 + C_2 = 1$, le nombre 2 se rapportant au constituant deux.

Si M_1 et M_2 sont les masses moléculaires des deux constituants, et n_1 et n_2 le nombre de moles de chacun d'eux, on a :

$$m = n_1M_1 + n_2M_2 = m_1 + m_2$$

On appelle fraction molaire des constituants un et deux les rapports :

$$N_1 = \frac{n_1}{n_1 + n_2} \quad \text{et} \quad N = \frac{n_2}{n_1 + n_2}$$

avec $N = N_1 + N_2 = 1$.

On définit de même les fractions volumiques par les rapports :

$$\phi_1 = \frac{V_1}{V_1 + V_2} \quad \text{et} \quad \phi_2 = \frac{V_2}{V_1 + V_2}$$

avec $\phi = \phi_1 + \phi_2 = 1$, V_1 et V_2 étant les volumes des deux constituants dans une phase.

.../...

Lorsque l'additivité des volumes des deux phases est vérifiéeau-delà de la température du point critique (c'est-à-dire lorsque le mélange diphasique devient monophasique), on peut exprimer ϕ et N en fonction de la fraction massique C que l'on détermine expérimentalement :

$$\phi^{-1} = 1 - \beta_0 + \beta_0 C^{-1}$$

$$\text{et} \quad N^{-1} = 1 - \alpha_0 + \alpha_0 C^{-1}$$

avec $\beta_0 = \frac{\rho_1}{\rho_2}$, rapport des densités des deux constituants,

et $\alpha_0 = \frac{M_1}{M_2}$, le rapport de leurs masses moléculaires.

3. Variance du système

Elle est définie selon la règle de GIBBS : *la variance* v *d'un système de phases en équilibre est égale au nombre de ses constituants indépendants augmenté du nombre des variables extérieures* (T *et* P) *et diminué du nombre de ses phases.*

$$v = c + 2 - \phi$$

Le tableau III donne la variance de quelques mélanges étudiés en détail dans le cadre de ce travail.

Pour un mélange binaire monophasique, la variance est égale à 3, et lorsqu'il devient diphasique, sa variance devient égale à 2. Par conséquent, un système diphasique sera complètement défini par deux paramètres indépendants : sa température et la fraction massique de l'un des deux constituants. On représentera son diagramme de coexistence des phases par une courbe rapportée à un système de coordonnées (T,C_i) avec i = 1 ou 2.

4. Coexistence des phases

A température et pression données, la composition des deux phases liquides A et B est fixée.

Pour les phases A et B, on a :

$$C_1^{(A)} + C_2^{(A)} = 1$$
$$C_1^{(B)} + C_2^{(B)} = 1$$

.../...

TABLEAU III

Variance de quelques systèmes étudiés

	Nombre de constituants	Nombre de phases	Variance	Variables indépendantes	Exemples de systèmes
A	2	1	3	T, P, C	Bromonaphtalène + huile 0,65 Cst au-dessus de 21°C
B	2	2	2	T, P	Bromonaphtalène + huile 3 Cst entre 0°C et 80°C
C	3	2	3	T, P, C	Bromonaphtalène + iodo-naphtalène + huile 0,65 Cst à 25°C
D	3	3	2	T, P	Iodure de méthylène + acide acétique + huile 0,65 Cst à 25°C

T : température ; P : pression ; C : concentration d'un des constituants.

A : mélange binaire monophasé
B : mélange binaire biphasé
C : mélange ternaire biphasé
D : mélange ternaire triphasé

avec en général $C_1^{(A)} \neq C_1^{(B)}$ et $C_2^{(A)} \neq C_2^{(B)}$.

C_1 et C_2 dépendent de la température du système. Lorsque l'on fait varier la température, la pression restant constante, la suite des états d'équilibre du mélange décrit une courbe de coexistence de phases, tout comme un fluide pur décrit une courbe d'équilibre liquide-vapeur.

La courbe de coexistence des phases, ou courbe de miscibilité réciproque, délimite deux régions (Figure 1) :

- la région intérieure à la courbe correspond à l'existence de deux phases liquides en équilibre mutuel ;
- la région extérieure à la courbe ne correspond qu'à l'existence d'une seule phase.

Lorsque le diagramme de coexistence des phases présente un maximum, comme c'est le cas du mélange binaire eau + phénol, représenté sur la figure 1-A, les coordonnées du maximum de la courbe dans le système (T, C_1) sont $(T_C, C_1^{(C)})$. T_C est la température critique de miscibilité et $C_1^{(C)}$ est la fraction massique critique pour le constituant un. Au-dessus de cette température, le mélange est miscible en toutes proportions. Pour une température T inférieure à T_C, le système présente deux phases A et B dont les concentrations en masse pour le constituant un sont respectivement :

$$C_1^{(A)} \quad \text{et} \quad C_1^{(B)}$$

La dépendance en pression modifie les coordonnées du point critique ($\frac{\Delta T_C}{\Delta P} \cong 0{,}1$ à $0{,}001$°C/atm.) et l'étendue du domaine de miscibilité.

La figure 1 représente également d'autres types de courbes de miscibilité réciproque possible. Nous allons montrer que le mélange binaire constitué par du bromonaphtalène et de l'huile aux silicones SI 200 a une courbe de coexistence semblable à celle du mélange eau plus phénol.

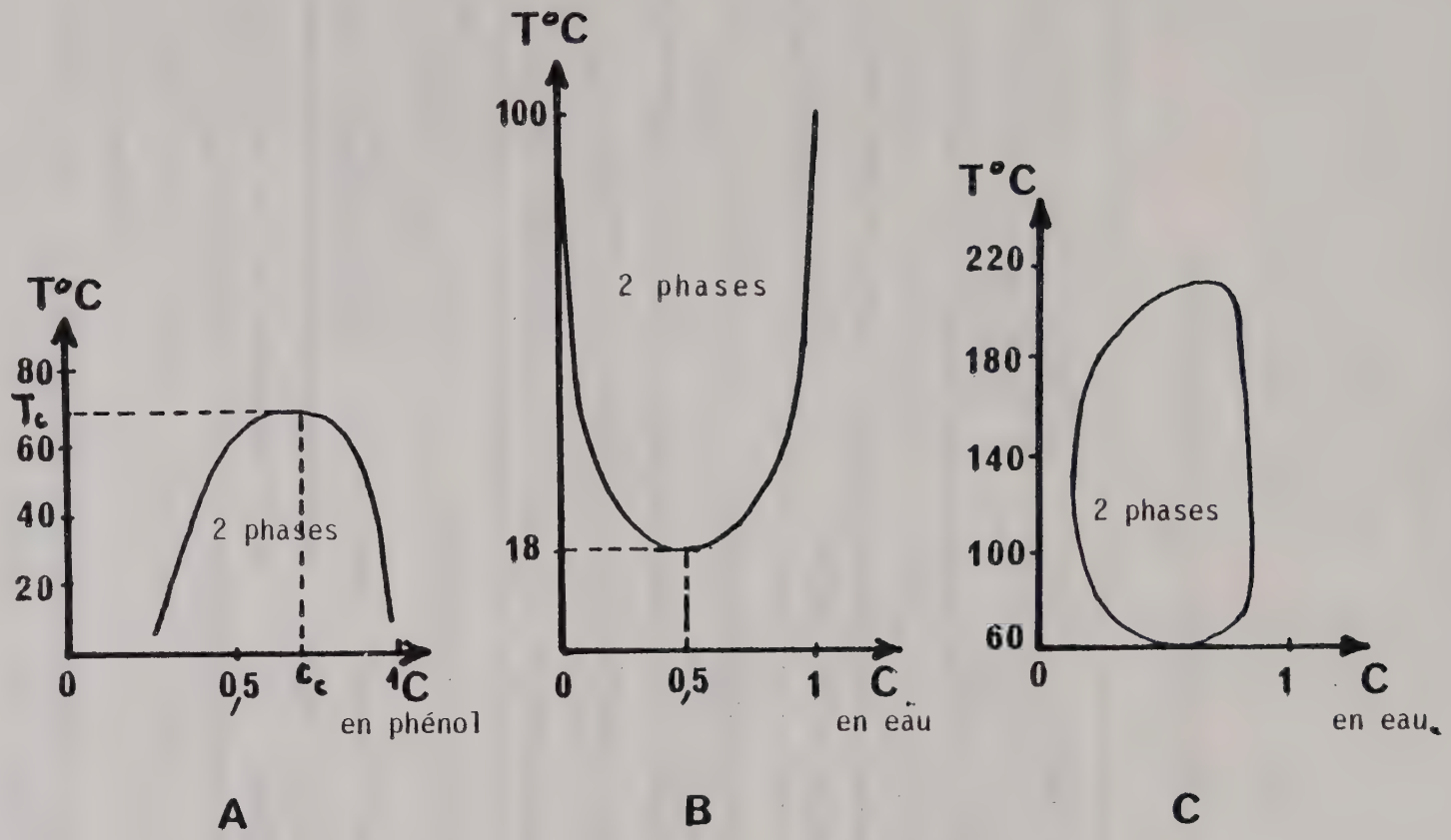
B - Diagramme de coexistence du mélange Bromonaphtalène + huile SI 200/3

1. Propriétés des constituants

Les deux éléments du système binaire sont :

- le mono-bromonaphtalène $C_{10}H_7Br$, dont les propriétés physiques sont données par le tableau IV ;
- l'huile aux silicones SI 200/3 de Rhône-Poulenc.

.../...



A Phénol et eau

B Triéthylamine et eau

C Nicotine et eau

FIGURE 1

Courbe de miscibilité de trois mélanges binaires, d'après FLEURY-MATHIEU "Thermodynamique".

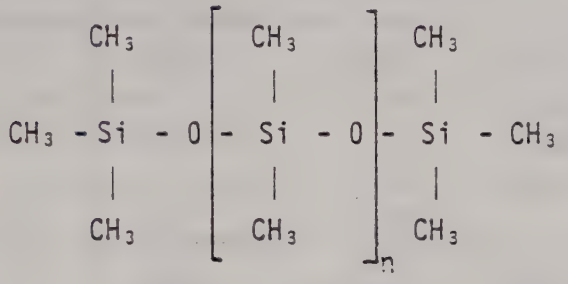
TABLEAU IV

Propriétés physiques du 1-Bromonaphtalène

Masse molaire	M = 207,08 g
Viscosité à 25°C	ν = 3,56 Cst
Point d'ébullition	281°C
Point de solidification	- 6,3°C
Indice de réfraction à 20°C pour le jaune	n_o = 1,658
Tension superficielle à 25°C	α = 37 dyne/cm
Densité à 25°C	ρ = 1,487 g/cm^{-3}
Conductibilité thermique	λ = qq 10^{-4} cal.cm/s.cm^2 °C
Solubilité	eau à chaud alcool, éther benzène partiellement
Couleur	jaune

d'après Handbook of Chemistry and Physics, 59th Edition, 1978/1979, C.R.C. Press.

C'est un mélange de polydiméthylsiloxanes, correspondant au motif $Si(CH_3)_2O$ répété un certain nombre de fois :



L'indice n est un nombre positif, fonction du degré de polymérisation de l'élément (voir graphique 1). Pour l'huile utilisée dans le mélange, la SI 200/3, n est de l'ordre de 1. Les propriétés physiques sont données par le tableau V. Bien que l'huile SI 200/3 soit un mélange d'huile, nous verrons qu'elle constitue avec le mono-bromonaphtalène un mélange se comportant comme un mélange binaire.

2. Etude expérimentale de la courbe de coexistence des phases

Nous avons utilisé deux méthodes expérimentales :

- une méthode visuelle avec onze échantillons de compositions différentes ;
- une méthode de mesure de l'indice de réfraction sur dix-sept échantillons différents.

a) Méthode visuelle

On détermine par refroidissement, à partir d'un mélange monophasé binaire, de fraction massique connue, la température d'apparition du ménisque. On procède par refroidissement, car, s'il est possible d'observer la démixtion quand T diminue, il faut en revanche agiter la cellule pour l'homogénéiser lorsque T franchit la température au-delà de laquelle le système serait homogène.

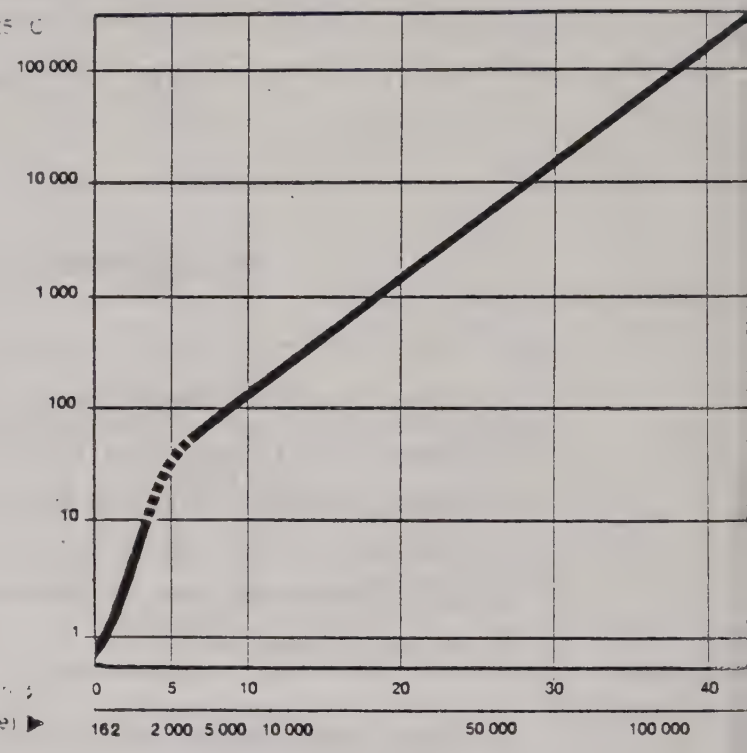
Au cours d'une première opération, le tube à essais contenant le mélange et le thermomètre sont plongés dans un bain d'eau (Figure 2) thermostaté, suffisamment chaud pour que le mélange soit homogène. Par refroidissement rapide, on évalue la température d'apparition du ménisque. Puis, dans une deuxième opération, pour mieux définir la température d'apparition du ménisque, on plonge le même tube à essais dans un bain d'eau thermostaté, dont la température n'est supérieure que d'un degré à celle déterminée précé-

.../...

Graphique 1

GRAPHIQUE 1

VISCOSITE DES HUILES POLYDIMETHYLSILOXANIQUES EN FONCTION DU DEGRE DE POLYMERISATION "n"



Remarque : la partie rectiligne de la courbe correspond à la relation de A.J. BARRY pour les masses moléculaires > 2 500 :

$$\log \eta_{cSt} = 1{,}00 + 0{,}0123\ M^{0.5}$$

D'après la documentation Rhodorsil Huiles de Rhône-Poulenc

D'une façon générale, la viscosité de ces huiles augmente avec leur degre de polycondensation, c'est-à-dire avec la valeur de l'indice "n".

Pour l'huile 3 cst, n ≅ 1 et M = 220,53 g. Le mélange binaire huile 3 cst avec le Bromonaphtalène se compose de deux éléments ayant des masses molaires sensiblement voisines. Bien que l'huile 3 cst soit déjà un mélange, le système binaire étudié se comporte comme si l'huile 3 cst était un corps pur. Ceci par contre n'est pas vrai avec les huiles de viscosités 1 cst et 2 cst.

TABLEAU V

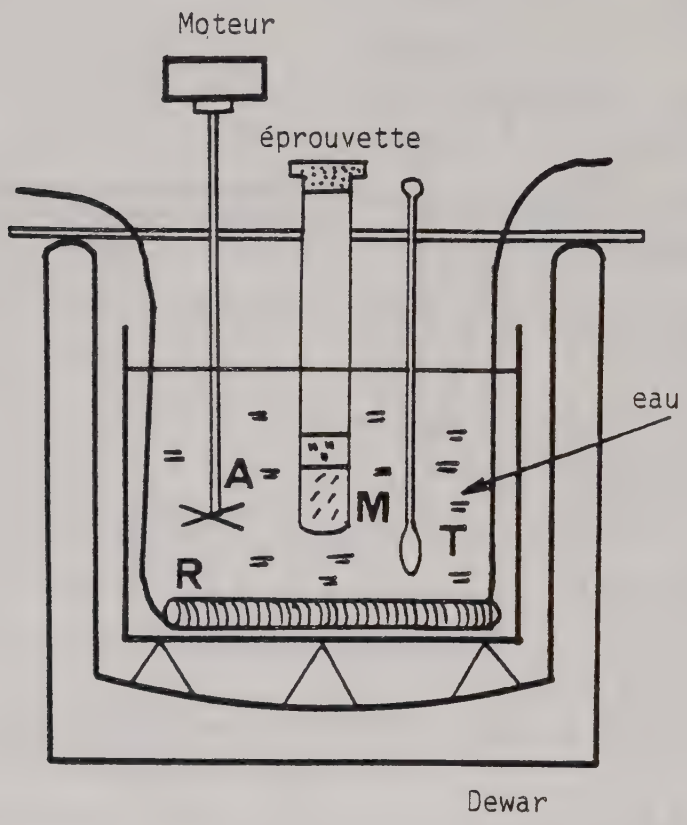
Propriétés physiques des huiles SI 200

Caractéristiques	200/0,65	200/1	200/2	47 V3	47 V5
Viscosité à 25°C en Cst en m^2/s	0,65 $6,5.10^{-7}$	1 1.10^{-6}	2 2.10^{-6}	3 3.10^{-6}	5 5.10^{-6}
Densité à 25°C	0,760	0,816	0,872	0,900	0,920
Point d'inflammabilité en °C	- 4	40	80	100	136
Point de congélation en °C	- 67	- 85	- 84	- 65	- 65
Indice de réfraction à 25°C pour le jaune	1,375	1,382	1,390	1,394	1,397
Tension superficielle à 25°C en dynes/cm	15,9	17,4	18,7	19,2	19,7
Tension de vapeur à 200°C en mm de Hg			350	145	
Coefficient de dilatation entre 25 et 100°C en $°C^{-1}$	$1,34.10^{-3}$	$1,34.10^{-3}$	$1,17.10^{-3}$	$1,06.10^{-3}$	$1,5.10^{-3}$
Chaleur spécifique en cal./g.°C en joules/g.°C	0,5 2,9	0,49 2,05	0,47 1,97		
Conductivité thermique en cal.cm/s.cm^2.°C en Watts/m.°C	$2,4.10^{-4}$ 0,1	$2,4.10^{-4}$ 0,1	$2,6.10^{-4}$ 0,11	$2,7.10^{-4}$ 0,113	$2,8.10^{-4}$ 0,12
Coefficient viscosité/température	0,31	0,37	0,48	0,51	0,55

D'après Documentation Rhodorsil Huile de Rhône-Poulenc.

FIGURE 2

Montage pratique pour déterminer
la courbe de miscibilité d'un mélange binaire



A. Agitateur

R. Résistance

M. Mélange binaire

T. Thermomètre.

demment. On refroidit alors très lentement le mélange, et on repère la température à laquelle apparaît le ménisque. Le temps mis par le mélange pour atteindre son équilibre dépend de la température à laquelle on opère. Si $T > T_c$ (température critique du mélange), le mélange est homogène, et il ne s'agit que d'une constante de temps de diffusion de la chaleur. Si $T \leq T_c$, le phénomène qui intervient est un phénomène de diffusion de masse (diffusion de concentration). Sa constante de temps est infinie en $T = T_c$, et reste très grande jusqu'à quelques dixièmes de degré de T_c. Cependant, l'intervention du champ de pesanteur accélère la démixtion d'autant plus efficacement que la différence de densités entre les liquides est grande. C'est le cas pour ce mélange, puisque nous avons $\Delta\rho \cong 0{,}5$ g/cm^3. Quelques minutes suffisent pour qu'après agitation, on observe deux phases homogènes lorsque l'on est loin de T_c. Les temps de mise en équilibre augmentent lorsque l'on se rapproche de T_c. Il faut attendre environ 30 mn pour $T - T_c \cong 1°C$.

L'endroit où apparaît le ménisque dans le tube à essais, à la température de démixtion, dépend de la composition initiale du mélange. En effet, soit V_T le volume total du mélange constitué par $V_A + V_B$, volumes respectifs des phases A et B. Appelons ϕ_A et ϕ_B les fractions volumiques du bromonaphtalène dans les phases A et B. On a :

$$\phi_A V_A + \phi_B V_B = \phi V_T$$

$$V_A + V_B = V_T$$

ϕ est la fraction volumique du bromonaphtalène dans le mélange homogène.

A chaque instant l'égalité suivante est vérifiée :

$$(\phi_A - \phi)\, V_A = (\phi - \phi_B)\, V_B$$

Trois cas sont possibles, selon que le mélange initial a une fraction volumique ϕ supérieure , inférieure ou égale à ϕ_c fraction volumique critique (Figure 3).

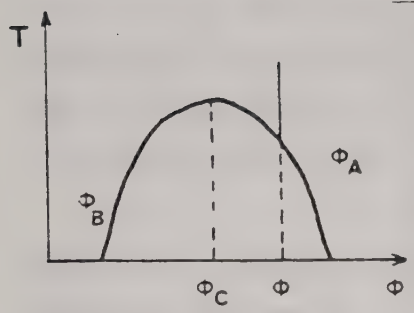
- $\phi > \phi_c$: à la démixtion $\phi_A \cong \phi$, tandis que ϕ_B est très différent de ϕ. V_A est donc très petit au départ, et le ménisque apparaît en haut.

- $\phi < \phi_c$: au contraire, le ménisque apparaît en bas du tube.

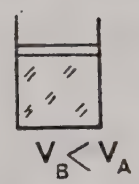
.../...

FIGURE 3

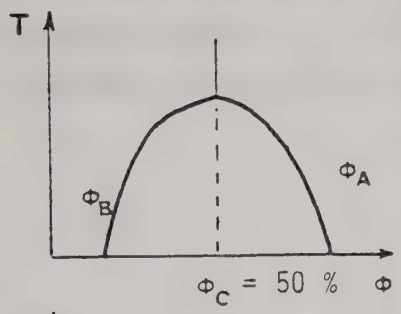
Apparition du ménisque pendant la démixtion



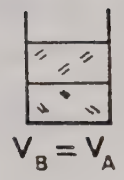
$\Phi > \Phi_C$



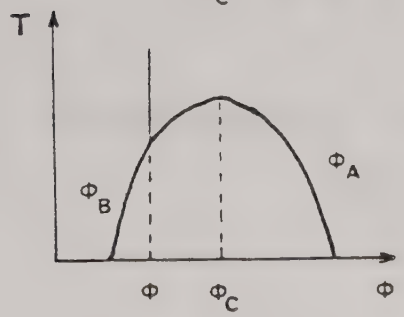
Le ménisque apparaît en haut.



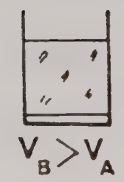
$\Phi = \Phi_C$



Le ménisque apparaît au milieu.



$\Phi < \Phi_C$



Le menisque apparaît en bas.

. $\phi = \phi_c$: le ménisque apparaît au milieu du tube si $\phi_c \cong 50$ %. Il constitue d'ailleurs un bon test de *criticité*.

Il est à remarquer qu'avec notre mélange, on observe, au voisinage du point critique, une *opalescence critique* due aux très fortes fluctuations d'indices, les deux constituants ayant une grande différence d'indice ($\Delta n \sim 0{,}26$) au départ.

α) Résultats expérimentaux.

Ils sont donnés dans le tableau VI. Portés sur un graphique, ils donnent la forme de la courbe de démixtion (Figure 4) de ce mélange dans le système de coordonnées (T, fraction massique de l'huile).

On détermine sur la courbe de coexistence la température critique T_c et la concentration critique C_c en huile. On a trouvé :

$T_c = 80{,}5°C \pm 0{,}5°C$ $\qquad$ $C_c = 36\% \pm 3\%$

β) Equation de la courbe de solubilité réciproque.

La loi la plus générale pour l'équation de la courbe de coexistence est une fonction en puissance de $(T - T_c)$ près de la température critique, avec un exposant β, et des termes correctifs {4,5} loin de T_c. La différence en concentration massique d'un des constituants entre la phase supérieure S et la phase inférieure I est exprimée par la loi {6} :

$$|C_I - C_S| = B\varepsilon^{\beta}(1 + b_1\varepsilon^{0,5} + b_2\varepsilon + \ldots) \qquad (1)$$

avec $\varepsilon = 1 - \frac{T}{T_c}$.

L'écart du diamètre à une loi linéaire dépend de la valeur de l'exposant critique σ de la chaleur spécifique {7} :

$$\frac{C_I + C_S}{2} = C_c + S\varepsilon + A\varepsilon^{1-\sigma} + \ldots \qquad (2)$$

Les paramètres B, b_1, b_2, C_c, S et A sont indépendants de la température.

Les équations (1) et (2) peuvent se déduire de l'équation (3) :

$$|C - C_c - S\varepsilon - A\varepsilon^{1-\sigma}| = \frac{B}{2}\varepsilon^{\beta}(1 + b_1\varepsilon^{0,5} + b_2\varepsilon + \ldots) \qquad (3)$$

avec $C = C_I$ ou C_S.

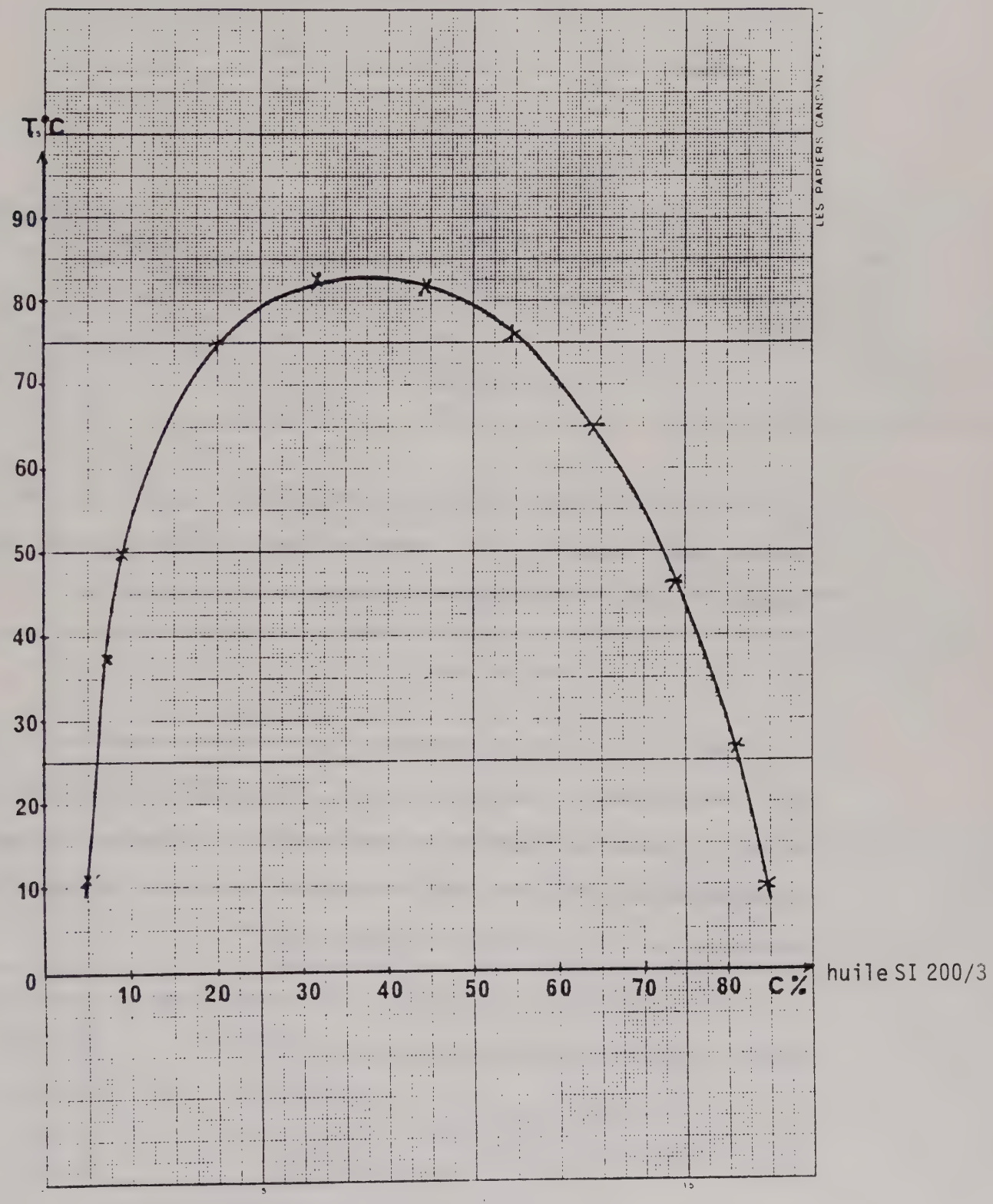
.../...

TABLEAU VI

Fraction massique en huile (en %)	T (°C) du mélange	Apparition du ménisque
4,961 ± 0,001	12,0 ± 0,1	au-dessus
7,055 ± 0,002	37,0 ± 0,5	+
9,416 ± 0,002	46,5 ± 0,5	+
19,971 ± 0,002	74,0 ± 0,5	+
30,265 ± 0,002	79,5 ± 0,5	vers le milieu
35,008 ± 0,003	81,0 ± 0,5	vers le milieu
39,719 ± 0,003	80,0 ± 0,5	vers le milieu
50,029 ± 0,003	75,5 ± 0,5	-
60,141 ± 0,003	65,0 ± 0,5	-
70,043 ± 0,003	47,0 ± 0,5	-
81,077 ± 0,003	9,4 ± 0,1	en-dessous

FIGURE 4

Courbe de solubilité réciproque du
mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200/3



x : points expérimentaux.

Afin de retrouver au mieux les données expérimentales, on développe ε et T en une série de C :

ordre 0 : $$T_{(0)} = T_c - \left|\frac{2}{B}(C - C_c)\right|^{1/\beta}$$

$$\varepsilon_{(0)} = 1 - \frac{T_{(0)}}{T_c}$$

ordre 1 : $$T_{(1)} = T_c - \left|\frac{2}{B}\,\frac{C - C_c - S\varepsilon_{(0)} - A\varepsilon_{(0)}^{0,9}}{1 + b_1\varepsilon_{(0)}^{0,5} + b_2\varepsilon_{(0)}}\right|^{1/\beta}$$

$$\varepsilon_{(1)} = 1 - \frac{T_{(1)}}{T_c}$$

T_c, C_c, B, β, S, A, b_1, b_2 sont les paramètres à ajuster. En réalité, les données expérimentales (voir courbe de démixtion) ne sont pas loin de la formule (3) avec les paramètres suivants :

$$b_1 = b_2 = S = A \cong 0$$

Nous avons utilisé un programme statistique élaboré par M. TOURNARIE {8}. Pour estimer la qualité du calcul, on considère l'écart entre les valeurs calculées et mesurées en température. La distribution des erreurs est mesurée par un coefficient de qualité Q. Si Q = 1, la déviation est aléatoire, si Q = 0, elle est systématique.

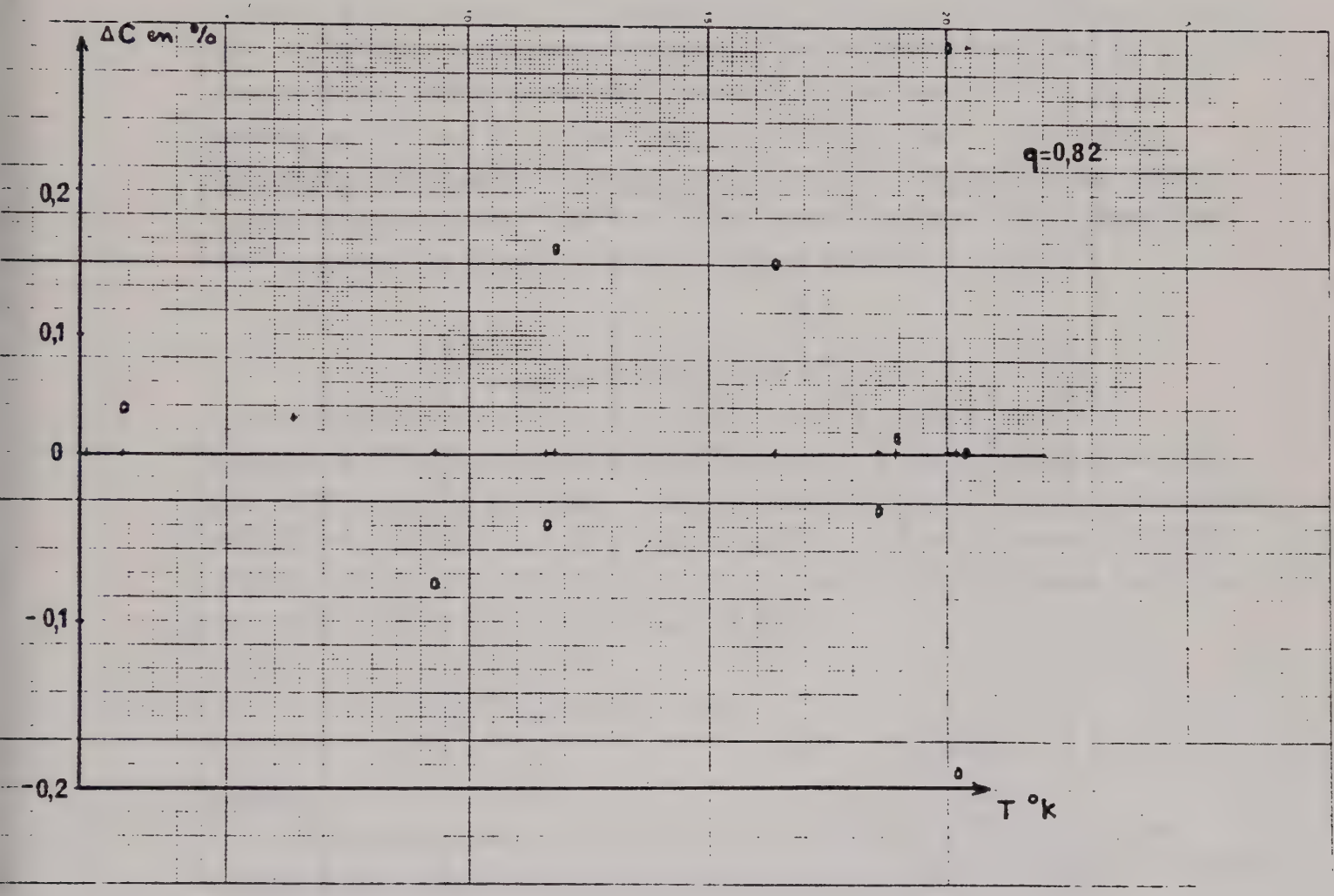
Les résultats sont montrés par les figures 5 et 6. Ceux-ci nous ont permis d'obtenir les valeurs suivantes :

$$C_c = 0,35 \pm 0,01$$
$$A = (1,5 \pm 2,6)\ 10^{-3}$$
$$B = (14,4 \pm 0,6)\ 10^{-2}$$
$$\beta = 0,397 \pm 6\ 10^{-3}$$
$$1 - \sigma = 0,94 \pm 0,40$$
$$T_c = (81,000 \pm 6\ 10^{-3})\ °C$$

.../...

FIGURE 5

Courbe des écarts absolus



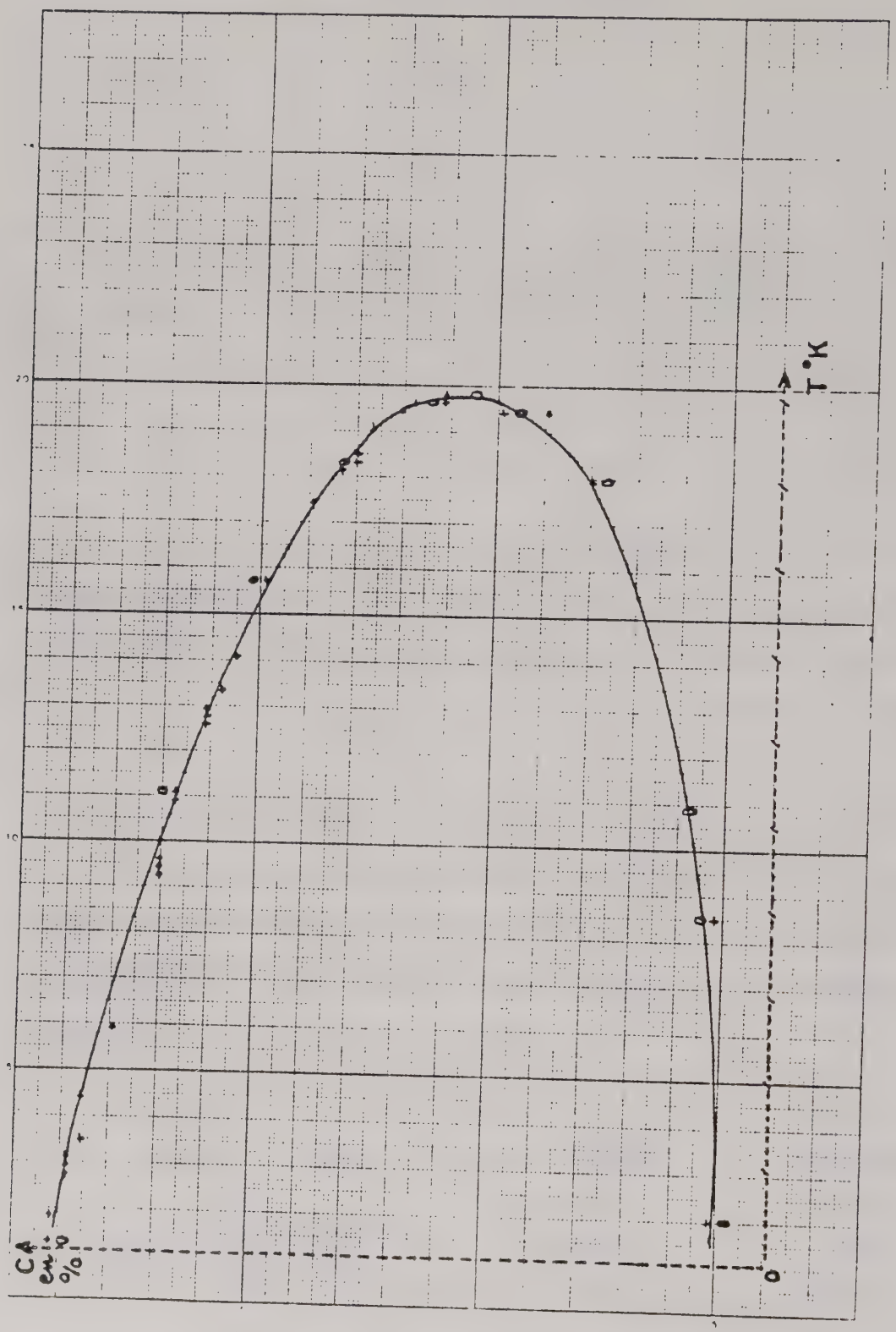
	abscisses	ordonnées
Min.	6.400E 00	- 2.714E-02
Max.	8.100E 01	3.363E-02
Pas.	7.160E-01	1.215E-03

\+ points calculés

0 points expérimentaux

FIGURE 6

Courbe de miscibilité du bromonaphtalène et de l'huile SI 200/3



	Abscisses	Ordonnées
Min.	9.400E 00	7.819E-03
Max.	8.100E 01	8.588E-01
Pas.	7.160E-01	1.702E-02

0 points expérimentaux

x points calculés.

On constate que l'exposant 1 - σ est proche de la valeur un, et que l'approximation du diamètre rectiligne est satisfaisante ici. La figure 6 montre l'écart entre les points expérimentaux et théoriques. Ils sont en bon accord, la déviation étant aléatoire.

γ) Approximation du diamètre rectiligne

On peut aussi obtenir une valeur de la concentration critique C_c du mélange, en extrapolant le diamètre rectiligne de la courbe de coexistence {9}. On calcule la moyenne arithmétique des fractions massiques en huile dans les deux phases à une même température (Tableau VII). On porte ces valeurs sur la courbe de coexistence, en fonction de la température (Figure 7). Les fractions massiques $C_I^{(H)}$ et $C_S^{(H)}$ sont déterminées sur la courbe de coexistence (Figure 6). Le diamètre est approximativement une droite jusqu'à la température de 75°C. Son équation est égale à :

$$\frac{C_I^{(H)} + C_S^{(H)}}{2} = 35{,}50 + 0{,}12(T_c - T)$$

Au-delà de 75°C, la moyenne arithmétique des fractions massiques ne suit plus cette loi. Cette anomalie sera également observée avec les indices de réfraction des phases au voisinage du point critique. En extrapolant le diamètre rectiligne jusqu'à la courbe de coexistence, on trouve que l'abscisse du point d'intersection est égale à :

$$C_c^{(H)} = (35{,}50 \pm 0{,}50)\,\%$$

Remarque

La détermination de la concentration critique C_c pour ce mélange constitué par des molécules de masses molaires semblables permet de dire qu'il ne se comporte pas comme une *solution strictement régulière*.

En effet, on appelle *solution strictement régulière* toute classe de solution dont les coefficients d'activité f_1 et f_2 des constituants 1 et 2 sont donnés {10} par les lois :

$$RT \log f_1 = K N_1^2$$

$$RT \log f_2 = K(1 - N_1)^2$$

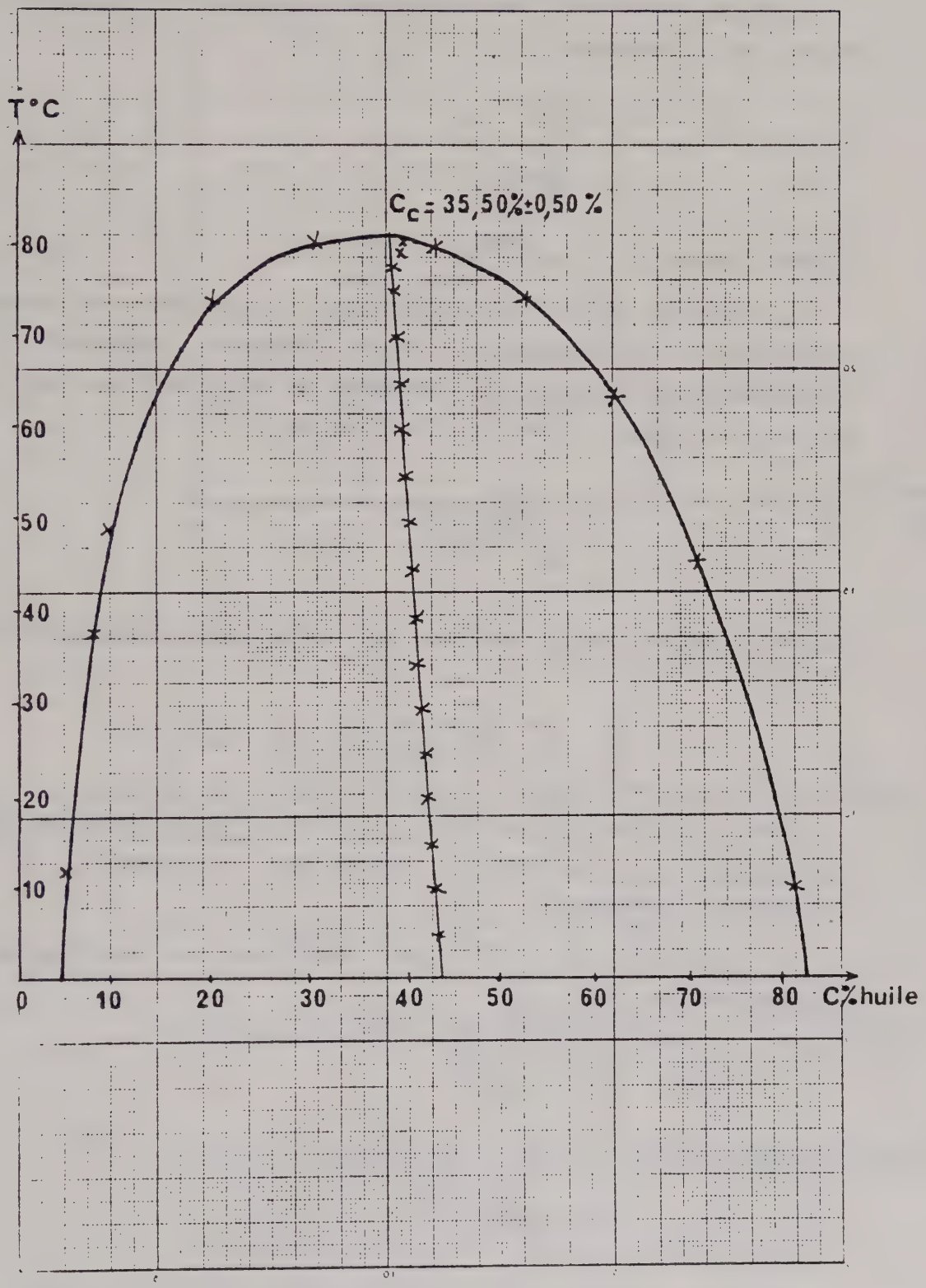
.../...

TABLEAU VII

T (°C) ± 0,5°C	$T_c - T$ (°C) ± 0,5°C	$C_I^{(H)}$ % ± 0,25	$C_S^{(H)}$ % ± 0,25	$\frac{C_I^{(H)} + C_S^{(H)}}{2}$
0	81	4,50	82,50	43,50
5	76	4,50	82,00	43,25
10	71	4,75	81,00	42,88
15	66	5,00	80,25	42,62
20	61	5,25	79,00	42,125
25	56	5,75	77,50	41,62
30	51	6,25	76,25	41,25
35	46	7,00	74,75	40,88
40	41	7,50	73,00	40,25
45	36	8,50	71,00	39,75
50	31	9,50	69,00	39,25
55	26	11,00	66,50	38,75
60	21	12,50	63,75	38,13
65	16	14,75	60,25	37,50
70	11	17,50	56,00	36,75
75	6	21,50	50,50	36,00
77,50	3,5	25,00	46,75	35,88
80	1	31,50	40,50	36,00

FIGURE 7

Approximation du diamètre rectiligne pour le mélange binaire
1.bromonaphtalène - huile SI 200/3



avec K une constante, R la constante des gaz parfaits, N_1 la fraction molaire de l'huile dans le mélange.

Dans ces conditions, les coordonnées du point critique dans le système d'axes (N_1,T) seraient :

$$N_c = 0,5$$

$$T_c = \frac{K}{2R}$$

(courbe figure 8).

La courbe de miscibilité d'un mélange binaire dépend du paramètre d'ordre choisi (le paramètre β variant légèrement). Cependant, ici, dans le système d'axe (N_1,T), les coordonnées du point critique sont les mêmes que dans le système d'axes (C_1,T). En effet :

$$N_1 = \frac{C/M_1}{\frac{C}{M_1} + \frac{100 - C}{M_2}}$$

avec M_1 et M_2 les masses molaires de l'huile et du bromonaphtalène.

Or :

$$\frac{dT}{dc} = \frac{dT}{dN_1}\,\frac{dN_1}{dc} = \frac{dT}{dN_1}\,\frac{100}{M_1M_2}\left|\frac{C}{M_1} + \frac{100 - c}{M_2}\right|^2$$

Dans le système d'axes (N_1,T), le point critique donné par $\frac{dT}{dN_1} = 0$ correspond bien au maximum de la courbe dans le système (C_1,T), d'après la relation précédente.

Si la solution était strictement régulière, les fractions molaires seraient égales à :

$$\frac{C_c}{M_1} = \frac{100 - C_c}{M_2}$$

ou bien :

$$M_1 = \frac{C_c}{100 - C_c}\,M_2$$

M_2 = 207,08 g (tableau IV), ce qui donne pour 33% < C_c < 39,5 % une masse molaire comprise entre 102 < M_1 < 135 pour l'huile SI 200/3, résultat incompatible avec la masse molaire :

.../...

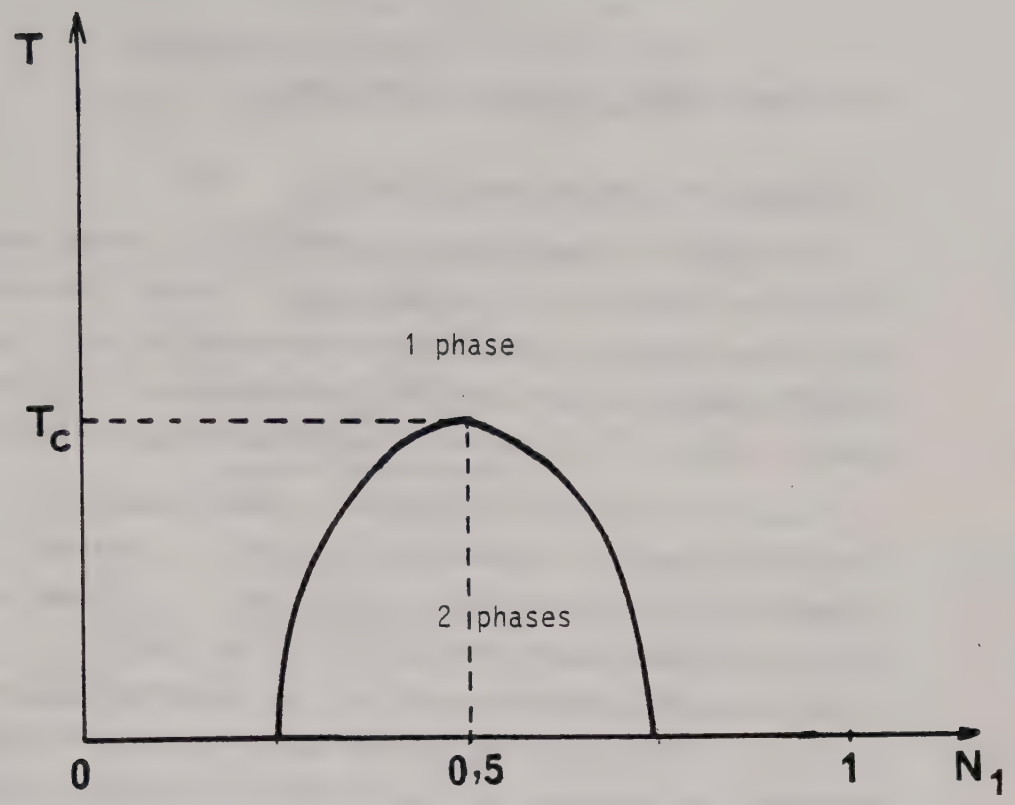


FIGURE 8

Courbe de démixtion d'une solution régulière à pression constante

Position du point critique $C(T_c = \frac{K}{2R}\ ,\ N_{1C} = \frac{1}{2})$

Courbe de coexistence de deux couches : $T = 2T_c \frac{1 - 2N_1}{\log \frac{1 - N_1}{N_1}}$

d'après I. PRIGOGINE et R. DEFAY "Thermodynamique chimique", p. 258.

$$M_1 = 146,38 + 74,15\ n$$

calculée d'après la formule développée.

b) Méthode des indices de réfraction

On étudie le comportement de l'indice de réfraction du mélange binaire en fonction de la température. Puisque l'indice de réfraction est lié au nombre de molécules par unité de volume ρ par la formule de LORENTZ-LORENZ, il est possible de représenter la courbe de coexistence dans le plan (n,T), n étant l'indice de réfraction du mélange binaire.

Pour un fluide pur, la courbe de coexistence dans le plan $(\frac{1}{V}, T)$, V étant le volume, est symétrique (Figure 9). L'ensemble des milieux des segments (AB) est une droite passant par C. Le diamètre rectiligne (CM) suit en première approximation une loi du type $B(T_c - T)^{\beta}$ près de T_c. β est un coefficient universel, et les expérimentateurs ont trouvé $0,30 < \beta < 0,36$, pour les fluides purs. En ce qui concerne les mélanges binaires, les mesures les plus récentes conduisent à des courbes du même aspect en (n,T) avec des exposants critiques β variant de 0,31 {5} à 0,33 {11}.Cependant, certains auteurs ont trouvé de faibles anomalies tout près de T_c {10}, comme nous en avons observé avec notre mélange.

α) Mode opératoire.

Les mesures d'indices sont faites avec un réfractomètre d'Abbe, thermostaté au dixième de degré. Il est gradué directement en indice, pour la longueur d'onde de la raie D du sodium. On apprécie le quart de la graduation, c'est-à-dire $\pm$ 25 10^{-5}.

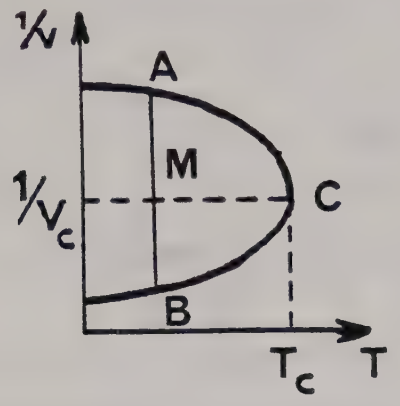
Le mélange binaire est placé dans le tube V_1 de l'appareil en pyrex, représenté sur la figure n° 10. Au départ le robinet R est fermé. Celui-ci n'est pas graissé, pour ne pas polluer les liquides. L'appareil est placé dans une cuve d'eau thermostatée au dixième de degré près. La température du bain est mesurée avec un thermomètre au mercure gradué au dixième de degré. On utilise un mélange critique (C_c = 36% d'huile SI 200/3). Il est agité pendant 20 mn pour obtenir une saturation complète et une température homogène du mélange égale à celle du bain. Après démixtion à la température T ($T < T_c$), il existe deux solutions S et I dont les concentrations en huile C_I^H et C_S^H dans les phases S et I sont données par le tableau VII.

.../...

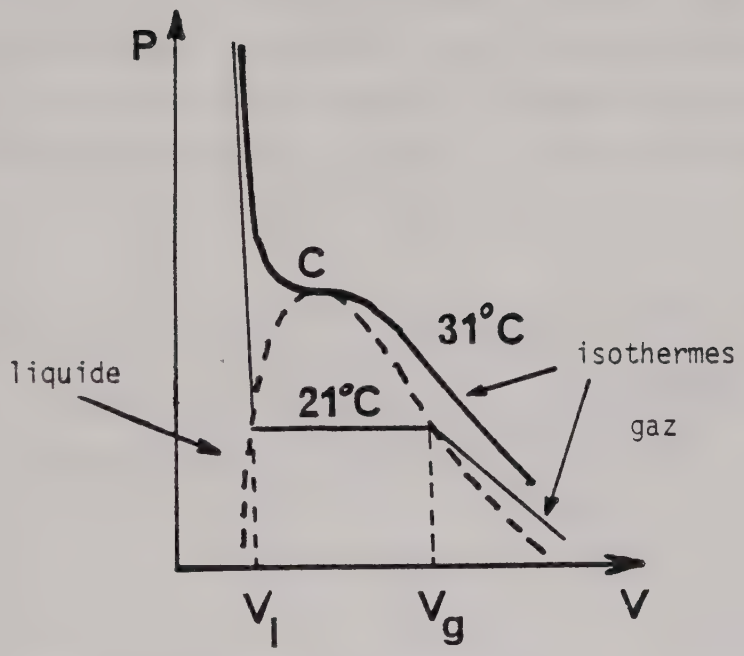
FIGURE 9

Changement de phase d'un fluide pur

d'après FLEURY-MATHIEU "Thermodynamique".



$B(T - T_c)^{\beta}$ près de T_c



Equilibre liquide-vapeur pour CO_2

C : point critique $\left(\frac{\partial P}{\partial V}\right)_T = 0$

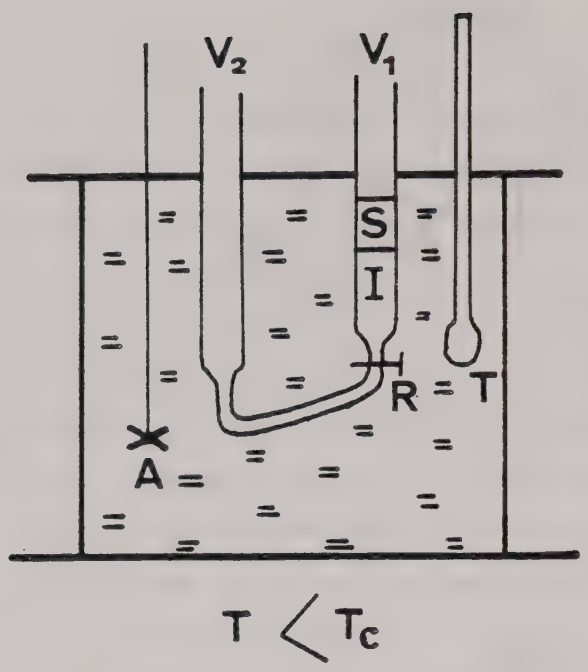


FIGURE 10

Cuve d'eau thermostatée utilisée pour étudier, en fonction de la température, l'indice de réfraction, la viscosité cinématique, et la tension superficielle des phases S et I du mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200.

La solution supérieure S est prélevée avec une pipette thermostatée à la même température que le mélange, et déposée sur le prisme de mesure du réfractomètre, lui-même thermostaté à la même température que le mélange prélevé. Pour la solution inférieure I, on laisse couler celle-ci dans le tube V_2, en ouvrant R. Après fermeture de R, I est prélevée dans V_2 avec la même pipette thermostatée et déposée sur le prisme du réfractomètre. On mesure alors n_S et n_I, les indices de réfraction pour la raie jaune du Hg des deux phases, à la température T.

L'opération est recommencée pour d'autres valeurs de T.

β) Analyse des résultats expérimentaux.

A partir des valeurs de l'indice de réfraction mesurées en-dessous de la température du point critique (T_c, C_c) des deux phases, la forme de la courbe de coexistence, le diamètre rectiligne, et la concentration critique peuvent être déterminés. Le diagramme de coexistence des phases en indices de réfraction (Figure 11) a été tracé à partir du tableau de données VIII. Il représente les valeurs de n_S et n_I en fonction de la température T. Leur valeur moyenne est une mesure de la densité moyenne du mélange binaire. Elle permet de tracer le diamètre rectiligne de la courbe de coexistence. On déduit, par extrapolation jusqu'à la température critique (voir figure 11), l'indice de réfraction critique. Il a été trouvé égal à :

$$n_c = 1{,}5160 \pm 0{,}0004$$

Au-delà de 70°C, les points $\frac{n_S + n_I}{2}$ ne se placent plus sur une droite. Il apparaît une courbure du diamètre rectiligne au voisinage du point critique. Elle est même ici importante. Ceci a été déjà observé par d'autres auteurs {10,11}, qui attribuent ce phénomène au comportement anormal de la densité du fluide. Il est nécessaire alors, pour calculer la concentration critique de ce mélange, d'utiliser une relation de LORENTZ-LORENZ avec un terme correctif {6} qui tient compte de ces anomalies. Il n'a pas été fait ce calcul ici, étant donnée l'insuffisance en nombre et en précision de nos mesures expérimentales.

.../...

TABLEAU VIII

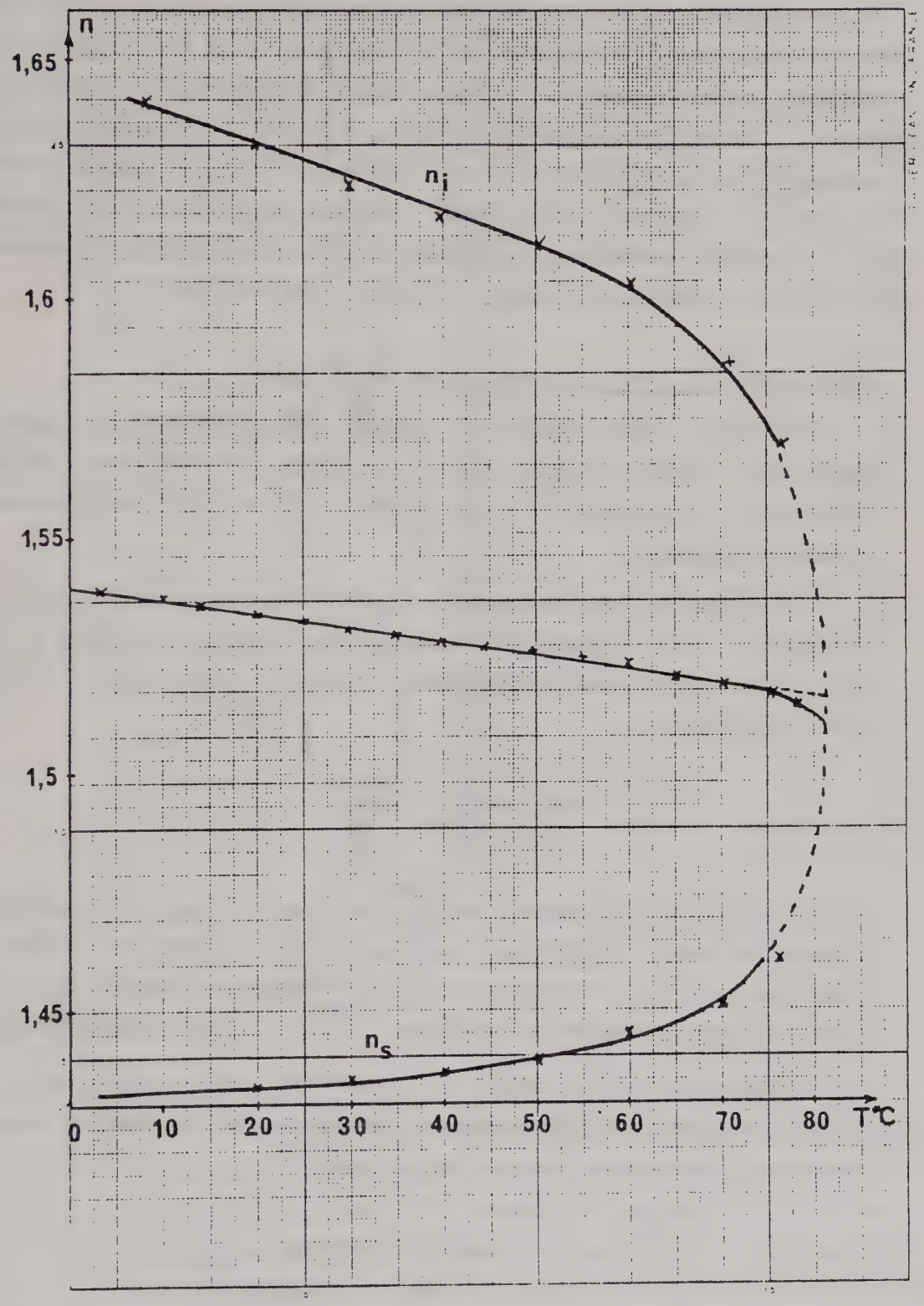
T (°C) ± 0,1°C	n_S ± 0,00025	n_I ± 0,0025	$\frac{n_S + n_I}{2}$
5	1,43250	1,64650	1,53950
10	1,43275	1,64375	1,53825
15	1,43300	1,63900	1,53600
20	1,43350	1,63525	1,53437
25	1,43405	1,63150	1,53277
30	1,43375	1,62625	1,53000
35	1,43505	1,62450	1,52972
40	1,43625	1,61900	1,52762
45	1,43750	1,61705	1,52727
50	1,43925	1,61250	1,52587
55	1,44105	1,60855	1,52480
60	1,44450	1,60500	1,52247
65	1,44600	1,59650	1,52125
70	1,44975	1,58800	1,51887
75	1,46205	1,57100	1,51652
77,5	1,47200	1,55700	1,51450
80	1,49105	1,53305	1,51200

Tableau donnant les valeurs des indices de réfraction de la phase supérieure n_S et de la phase inférieure n_I du système bromonaphtalène + huile SI 200/3.
T est la température en-dessous du point critique.

FIGURE 11

Courbe de coexistence du mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200/3

d'après les valeurs du tableau VIII.



Le diamètre rectiligne a pour équation : $\frac{n_S + n_I}{2} = A + B'(T_c - T)$

avec $A = 1{,}5160 \pm 4.10^{-4}$

$B' = 3{,}1.10^{-4}\,°C^{-1}$

n_I : indice de la phase inférieure ; n_S : indice de la phase supérieure.

IV - ETUDE EXPERIMENTALE DE LA VISCOSITE DU MELANGE BINAIRE SUR LA COURBE DE COEXISTENCE DES PHASES

La viscosité du mélange ne joue pas de rôle important dans la déflection de l'interface. Par contre, elle intervient dans la vitesse du fluide convectant, et par conséquent dans le temps de réponse de l'interface à se déformer. Il a été trouvé une relation {21} entre la vitesse radiale et la viscosité qui montre que le fluide convecte avec une vitesse grande si la viscosité du milieu est faible. Ceci confirme les observations expérimentales. Il sera donc important de connaître la viscosité et son comportement en fonction de la température pour le mélange binaire étudié.

1. Mesure de la viscosité cinématique du mélange

On utilise le même montage et le même mode opératoire que dans la mesure des indices de réfraction des couches. On remplace le réfractomètre par un viscosimètre du type OSTWALD (Figure 12) placé dans un bain d'eau thermostaté.

Le principe des viscosimètres à capillaire repose sur la loi de POISEUILLE {13}. On compare le temps d'écoulement au travers d'un tube capillaire d'un volume déterminé du liquide inconnu à celui d'un liquide connu. On obtient :

$$\frac{D}{D'} = \frac{\nu'(p_1 - p_2)}{\nu(p_1' - p_2')} = \frac{\rho t'}{\rho' t}$$

D et D' sont respectivement les débits d'un liquide, de viscosité connue ν, s'écoulant sous la différence de pression $p_1 - p_2$ et du liquide, de viscosité inconnue ν', s'écoulant sous la différence de pression $p_1' - p_2'$; ρ et ρ' sont les masses volumiques, t et t', les durées d'écoulement.

En supposant que la variation de pression $p_1 - p_2$ varie peu d'un liquide à l'autre (on s'arrange pour comparer des liquides de densités voisines), le rapport des débits se simplifie :

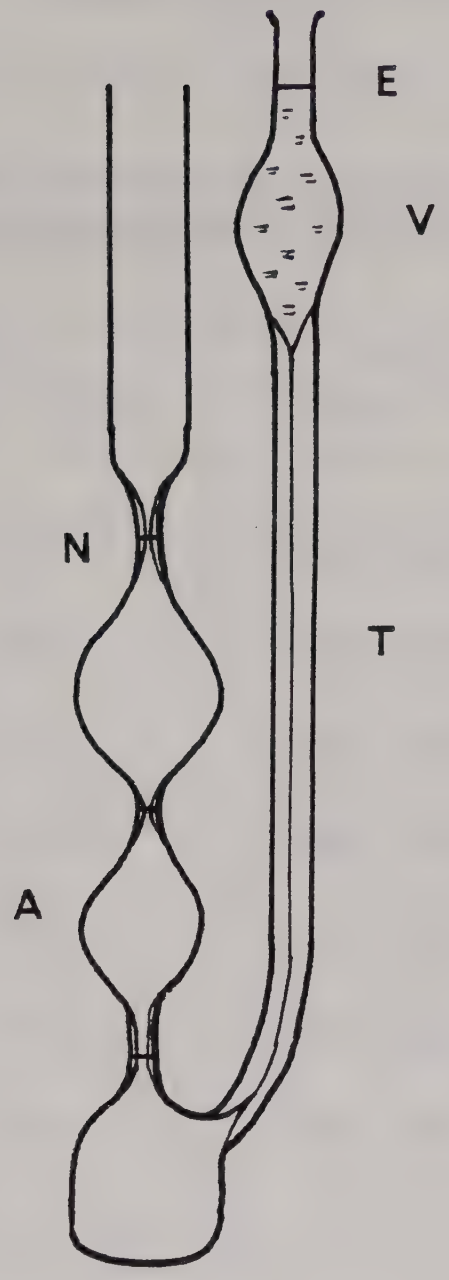
$$\frac{\nu'}{\nu} = \frac{\rho t'}{\rho' t} \quad \text{ou bien encore} \quad \frac{\eta'}{\eta} = \frac{t'}{t}$$

Le rapport des viscosités dynamiques est égal au rapport inverse des temps d'écoulement des deux fluides.

.../...

FIGURE 12

Viscosimètre d'Ostwald



On remplit le tube de gauche de l'appareil jusqu'en N avec le liquide dont on ne connaît pas la viscosité. Par aspiration, on fait monter le liquide jusqu'en E dans la partie droite de l'appareil. On laisse alors s'écouler librement le liquide à travers le capillaire T et on note le temps qui sépare le passage du liquide entre les deux traits qui encadrent l'ampoule A.

TABLEAU IX

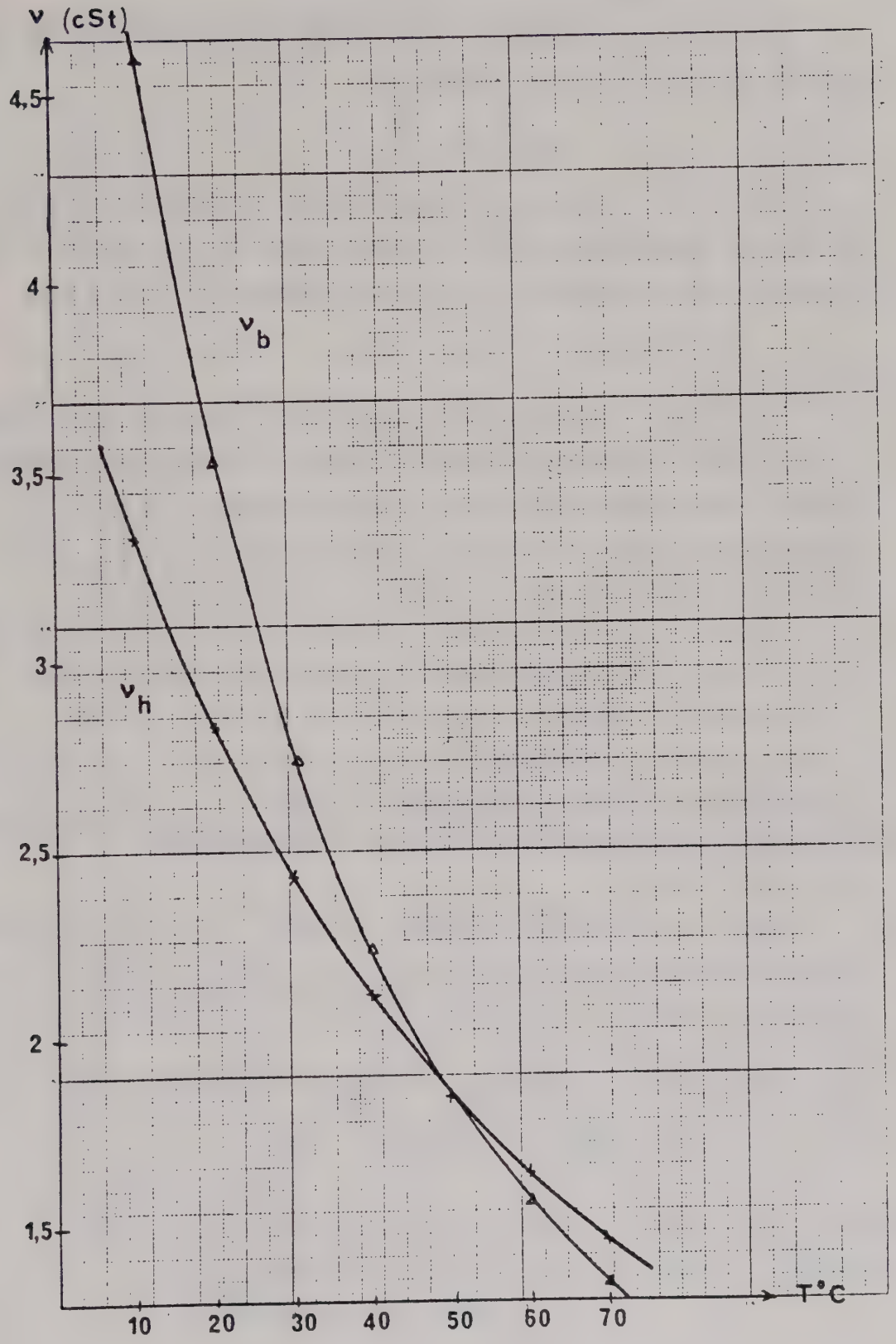
Variation thermique de la viscosité cinématique de l'huile SI 200/3 et du mono-bromonaphtalène purs

T (°C)	ν_h(cSt) ou 10^{-6} ν_h(m^2s^{-1})	ν_b(cSt) ou 10^{-6} ν_b (m^2s^{-1})
10,0 ± 0,1	3,335 ± 0,005	4,770 ± 0,005
20,0 ± 0,1	2,830 ± 0,005	3,560 ± 0,005
30,0 ± 0,1	2,435 ± 0,005	2,755 ± 0,005
40,0 ± 0,1	2,120 ± 0,005	2,245 ± 0,005
50,0 ± 0,1	1,855 ± 0,005	1,845 ± 0,005
60,0 ± 0,1	1,645 ± 0,005	1,570 ± 0,005
70,0 ± 0,1	1,465 ± 0,005	1,345 ± 0,005

Les résultats sont portés sur la Figure 13.

FIGURE 13

Variation thermique de la viscosité cinématique des liquides purs.



ν_b : viscosité cinématique du 1.bromonaphtalène.

ν_h : viscosité cinématique de l'huile SI 200/3.

2. Résultats expérimentaux

Ils sont donnés par les tableaux IX et X.

La viscosité cinématique d'un liquide est une fonction de la température selon une loi de la forme {13} :

$$\nu(T) = AT + \frac{B}{T}$$

A et B sont des constantes qui dépendent de la nature du liquide. A est en général négatif, et B est plus petit que A ($B < A$), comme on peut le constater sur les courbes $\nu = f(T)$ des figures 13 et 14.

3. Conclusion

Les courbes précédentes montrent que la viscosité des liquides purs ou en solutions saturées diminuent lorsque la température augmente. Ils ont un comportement semblable aux liquides normaux, c'est-à-dire à des corps purs de composition simple, comme par exemple l'eau (1 cp) ou la glycérine ($\sim$ 10 poises), qui obéissent aux lois de POISEUILLE.

Comme on pouvait le prévoir, l'écart entre les viscosités cinématiques des couches I et S diminue quand la température augmente, pour s'annuler à la température du point critique. Si on trace les courbes $\nu = f(c_H)$ pour chaque phase sur un même graphique, on obtient une courbe de même allure que la courbe de démixtion (Figure 15). C_H est la fraction massique en huile pour une phase, déterminée sur la courbe de coexistence des phases à la température T.

Soit M le milieu du segment AB joignant les points représentant les deux couches saturées en équilibre, à une même température. Les coordonnées des points A, B, M dans le système d'axes (ν, c_H) sont :

$$A \begin{cases} b = c_A \\ \nu_I \end{cases} \quad B \begin{cases} h = c_B \\ \nu_S \end{cases} \quad M \begin{cases} \frac{1}{2}(b + h) = C_M \\ \frac{1}{2}(\nu_I + \nu_S) = \nu_M \end{cases}$$

.../...

TABLEAU X

T°C	ν_S(cSt) ou $\nu_S \cdot 10^6 (m^2 \cdot s^{-1})$	C_H^S(%)	ν_I(cSt) ou $\nu_I \cdot 10^6 (m^2 \cdot s^{-1})$	C_H^I(%)
10,0 ± 0,1	3,275 ± 0,005	81,00	4,64 ± 0,02	4,75
20,0 ± 0,1	2,770 ± 0,005	79,00	3,44 ± 0,03	5,25
30,0 ± 0,1	2,353 ± 0,002	76,25	2,67 ± 0,02	6,25
40,0 ± 0,1	2,041 ± 0,001	73,00	2,205 ± 0,005	7,50
50,0 ± 0,1	1,782 ± 0,001	69,00	1,813 ± 0,006	9,50
60,0 ± 0,1	1,570 ± 0,001	63,50	1,544 ± 0,005	12,50
70,0 ± 0,1	1,398 ± 0,002	56,00	1,397 ± 0,006	17,50
75,0 ± 0,1	1,377 ± 0,004	50,00	1,327 ± 0,005	22,00

Variation thermique des viscosités cinématiques des phases supérieures et inférieures du système diphasique.

ν_S : viscosité de la solution supérieure.

ν_I : viscosité de la solution inférieure.

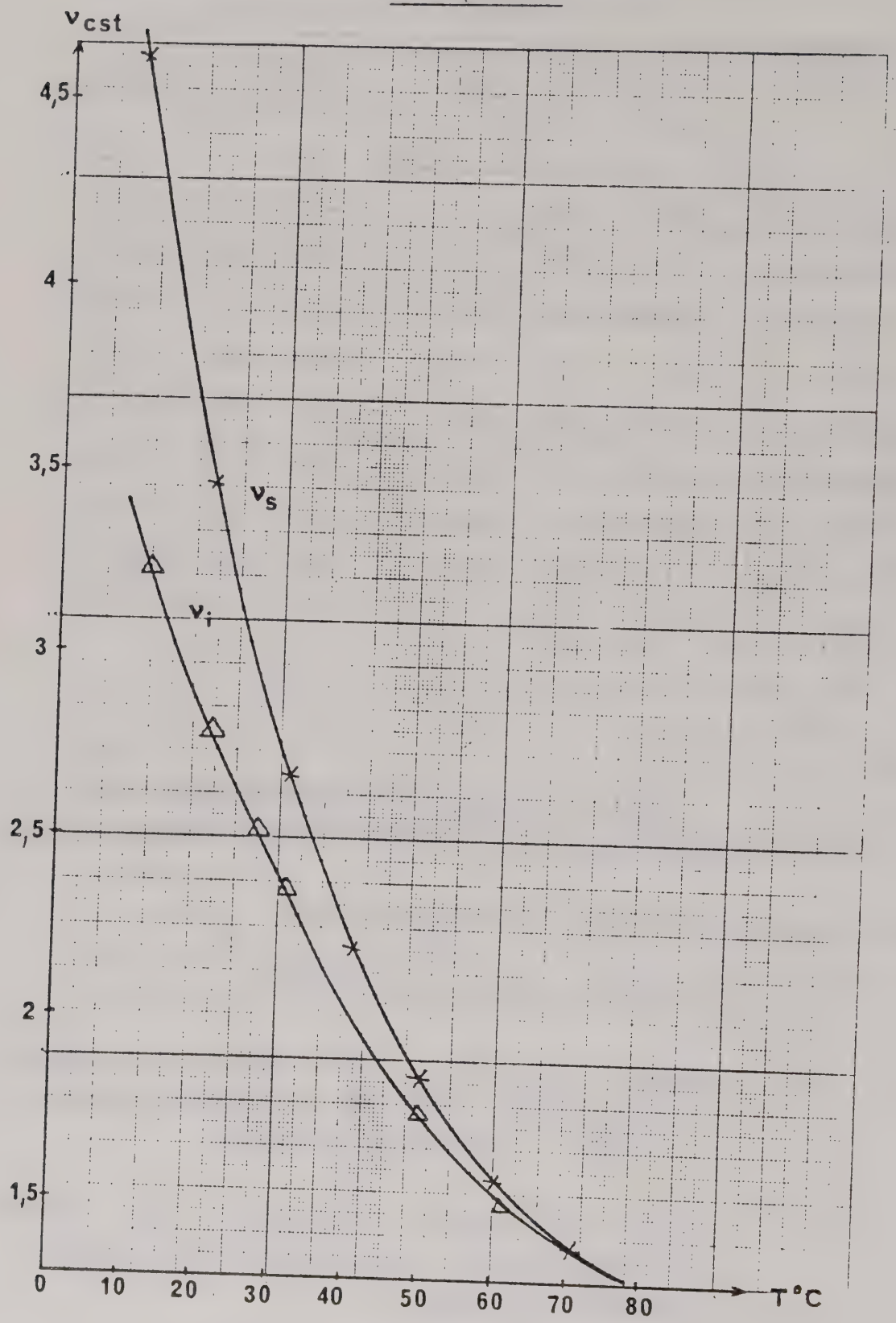
C_H^S : concentration en masse de l'huile dans la phase supérieure. La valeur de C_H^S est déterminée sur la courbe de démixtion (Figure n° 6) pour la température considérée.

C_H^I : concentration en masse de l'huile dans la phase inférieure. C_H^I est déterminée sur la courbe de démixtion (Figure n° 6) pour la température considérée.

Les résultats sont portés sur la figure n° 14.

FIGURE 14

VARIATION THERMIQUE DE LA VISCOSITE CINEMATIQUE DES SOLUTIONS A L'EQUILIBRE

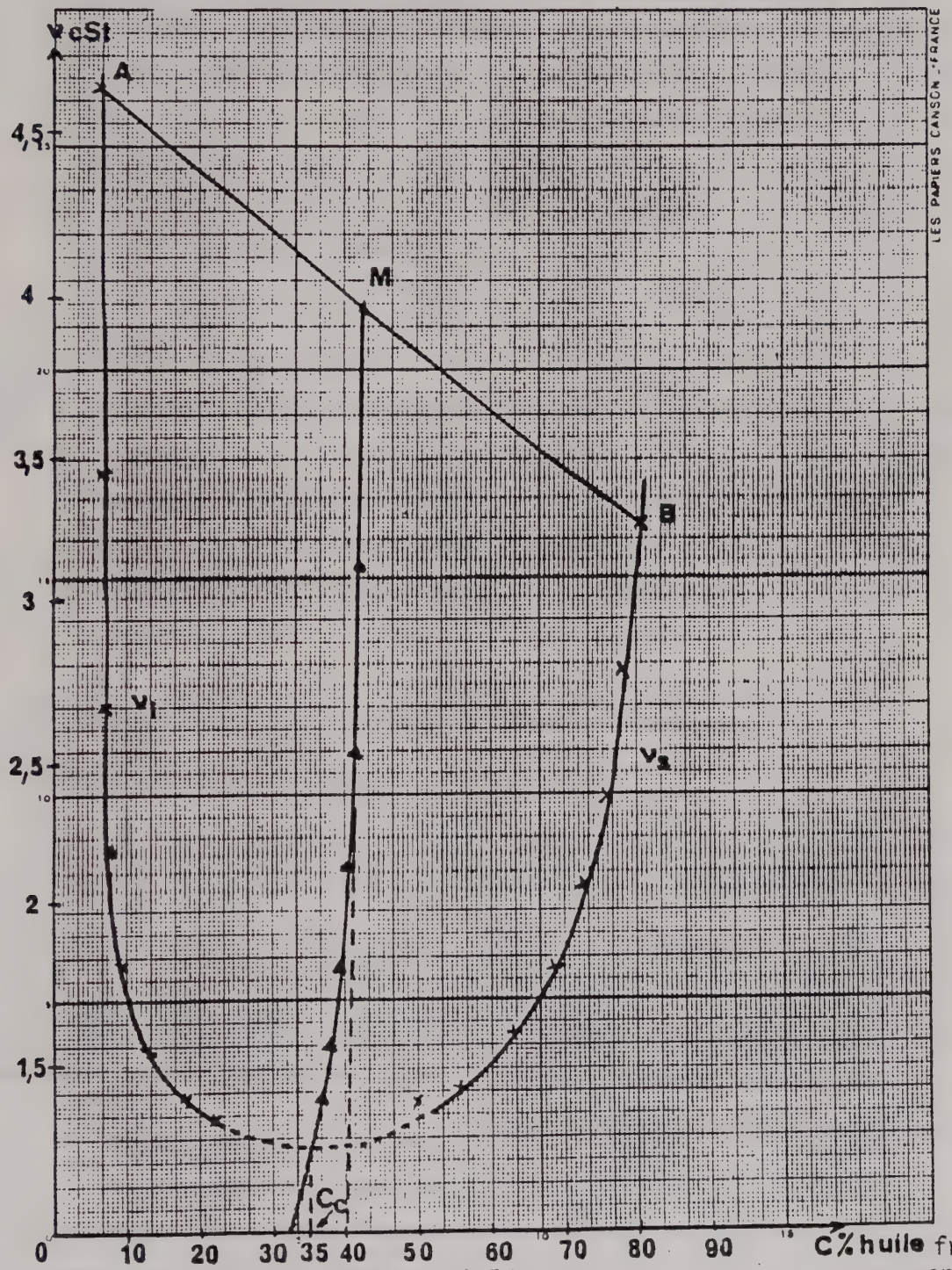


ν_S : viscosité cinématique de la solution supérieure (x)

ν_I : viscosité cinématique de la solution inférieure (Δ)

FIGURE 15

Variation des viscosités cinématiques des solutions S et I du mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200/3 en fonction de la fraction massique en huile.



fraction massique en huile SI 200/3

C_c = 35,0% ± 0,5%

ν_I : viscosité cinématique de la solution inférieure.

ν_S : viscosité cinématique de la solution supérieure.

Calcul des coordonnées du "diamètre rectiligne" en viscosité

T (°C)	ν_M(cSt)	C_M (%)	
10,0	3,955	42,875	
20,0	3,105	42,125	
30,0	2,510	41,25	
40,0	2,125	40,25	
50,0	1,795	39,25	écart au diamètre rectiligne
60,0	1,555	38,00	
70,0	1,395	36,75	

Ce diamètre coupe la courbe en un point, donnant :

- la viscosité critique ν_C = 1,250 cSt,
- la concentration critique c_C = 35,0% ± 0,5 %,

résultat compatible avec celui trouvé avec la méthode visuelle.

On retrouve la déviation au diamètre rectiligne déjà observée précédemment avec la mesure en indice de réfraction des deux phases, au voisinage du point critique.

4. Conclusion générale sur le diagramme de coexistence des phases

Nous avons étudié la courbe de coexistence du mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200/3 en utilisant deux approches différentes, c'est-à-dire une méthode visuelle sur 11 échantillons de fraction massique C différents, et une mesure d'indice de réfraction des phases sur un mélange critique, à différentes températures. Nous avons déterminé la température critique $T_c = (81 \pm 610^{-3})°C$, la concentration critique $C_c = (35 \pm 1)\%$ d'huile SI 200/3, et l'exposant critique $\beta = 0,397 \pm 610^{-3}$ de la loi $\Delta C = B\varepsilon^{\beta}$ avec $\varepsilon = 1 - \frac{T}{T_c}$. Cependant, la valeur de β trouvée diffère de celle du modèle tridimensionnel d'ISING ($\beta = 0,312$ ou $0,325$ {6}) ou de celles trouvées par d'autres auteurs ($0,30 < \beta < 0,36$) pour d'autres systèmes binaires. On attribue cet écart à la mise en évidence d'une anomalie de la variation de la densité du fluide au voisinage du point critique, par l'étude du diamètre rectiligne dans la mesure des indices de réfraction des deux phases, de la fraction massique en huile, ou de la viscosité du mélange. On attribue cette déviation à la loi du diamètre rectiligne à la fois aux effets de gravité et aux temps d'équilibre {10, 11}. Il serait intéressant, pour mieux définir cette anomalie, d'augmenter et le nombre et la précision des mesures expérimentales au voisinage du point critique.

V - TENSION SUPERFICIELLE ET INTERFACIALE DU MELANGE BINAIRE

1. Généralités sur la tension interfaciale

A la frontière entre deux liquides A et B, une molécule de A est attirée par les autres molécules de A, avec une force différente de celle exercée sur la même molécule par les molécules de B. La loi de LAPLACE est applicable à cette frontière comme à celle qui existe entre un liquide et sa vapeur {14}. Seule la nomenclature change : la tension et l'énergie superficielles sont appelées dorénavant tension et énergie interfaciales.

a) Tension interfaciale et miscibilité réciproque des deux constituants

La règle est la suivante {15} : la tension interfaciale α_i entre deux liquides A et B est d'autant plus importante que la différence entre les deux liquides est grande. Cette différente diminue si la solubilité mutuelle augmente. Lorsque cette dernière est suffisamment grande, les deux liquides deviennent semblables et l'interface liquide-liquide disparaît.

.../...

Le tableau XI présente les tensions interfaciales α_i de cinq alcanes, par rapport à l'eau à 20°C, en fonction de leur solubilité C (fraction massique) dans l'eau. La solubilité de l'hexadécane était trop petite pour être mesurée. Apparemment, à miscibilité nulle, la tension interfaciale entre l'eau et les alcanes devrait être au-dessus de 54 dynes/cm.

Le tableau XII illustre la relation inverse entre la tension interfaciale à l'équilibre et la miscibilité avec l'eau de différents liquides organiques, à 20°C. On constate que plus la différence entre les phases coexistantes diminue, plus la tension interfaciale tend vers zéro.

b) Tension interfaciale et température

La variation thermique de la tension interfaciale dépend de la variation thermique de la miscibilité des deux composants. Si cette dernière varie peu, alors la tension interfaciale du système ne varie pratiquement pas.

Par exemple, {14} l'association eau + benzène donne près de T_c

$$\frac{d(C_1 - C_2)}{dT} = - 0,0044\ °C \quad \text{et} \quad \frac{d\alpha_i}{dT} = - 0,026\ \frac{\text{dyne}}{\text{cm.°C}}$$

et le mélange eau + nicotine donne près de T_c

$$\frac{d(C_1 - C_2)}{dT} = 5,5\ °C \quad \text{et} \quad \frac{d\alpha_i}{dT} = 0,19\ \frac{\text{dyne}}{\text{cm.°C}}$$

La tension interfaciale est nulle au point critique, comme pour un fluide pur. On devra donc s'attendre à avoir une tension interfaciale très faible au voisinage de la température critique du mélange. Si on choisit un système diphasique tel que sa température critique soit voisine de la température ambiante (par exemple, le mélange bromonaphtalène + huile SI 200/0,65 à une température critique égale à 21,7°C), on peut, au voisinage de 20°C, obtenir une tension interfaciale très faible.

c) Tension interfaciale et tension superficielle

Considérons deux liquides purs A et B de tensions superficielles α_A et α_B. Associons ces deux liquides de telle sorte qu'il existe une interface liquide-liquide. Deux cas peuvent se produire :

.../...

TABLEAU XI

Alcanes	α_i (dyne/cm) à 20°C	C(mg/kg) à 20°C
n-pentane	50,2	38
n-hexane	50,8	10
n-heptane	51,2	03
n-octane	51,7	0,7
n-hexadecane	53,8	?

D'après J.J. BIKERMAN {3}, page 119.

TABLEAU XII

Liquides	α_i dyne / cm	$C_1 - C_2$ (%)
Tétrachlorure de carbone	45	99,9
Nitrobenzène	26	99,5
Sulfure de carbone	48	99
Ether	10,7	94
Aniline	5,85	91,5
Ethyle acétate	2,9	89
Alcool isobutylique	2,1	75
Alcool butylique	1,6	72

D'après J.J. BIKERMAN {3}, page 119.

- $C_1 - C_2$ est la différence en composition entre les phases coexistantes.
- C_1 et C_2 sont les pourcentages en poids du composé organique dans les phases 1 et 2.

- les deux liquides sont non-miscibles ; la tension interfaciale α_{AB} est alors égale à :

$$\alpha_{AB} = \alpha_A - \alpha_B$$

Cette loi a été suggérée par YOUNG {16}

- les deux liquides sont partiellement miscibles ; la tension interfaciale α'_{AB} est alors égale à :

$$\alpha'_{AB} = \alpha'_A - \alpha'_B$$

α'_A et α'_B sont les tensions superficielles des deux phases mutuellement saturées.

La dernière relation est connue comme étant "la règle d'Antonoff". Lorsque $\alpha'_A = \alpha'_B$, la tension interfaciale est nulle. Il n'y a plus d'interface liquide-liquide. Cette équation est confirmée pour beaucoup de systèmes binaires, tel que eau + nitrobenzène ou eau + tétrachlorure carbone, ainsi que notre système.

2. Etude expérimentale de la tension superficielle et interfaciale du système diphasique bromonaphtalène + huile SI 200/3 en fonction de la température

a) Mode opératoire

La méthode expérimentale utilisée est la même que celle employée pour la mesure des indices et des viscosités des deux phases. La solution à étudier est placée dans un vase thermostaté, posé sur la platine d'un tensiomètre du type Dognon-Abribat {17}. La température est donnée par un thermomètre plongeant dans la solution. Les mesures sont faites à l'aide d'un étrier en platine irridié à 22%, de 0,2 mm de diamètre. Chaque mesure a été faite en statique et par arrachement. Seule la valeur la plus élevée de ces deux mesures a été gardée. C'est pratiquement toujours celle par arrachement qui a été conservée.

b) Résultats expérimentaux

Ils sont représentés sur les tableaux XIII. Les tensions superficielle inférieures à 0,2 dyne /cm ne sont pas mesurable sur le tensiomètre.

Pour la clarté du graphe, les marges d'erreur n'ont pas été portées sur les courbes $\alpha = f(T)$ (figure 16).

.../...

TABLEAU XIII

a)

t (°C)	α_S (dyne / cm)	α_I (dyne / cm	α'_I (dyne / cm)
10,0 ± 0,1	19,3 ± 0,3	38,3 ± 0,5	22,2 ± 0,3
20,0 ± 0,1	18,5 ± 0,3	37,4 ± 0,5	21,5 ± 0,3
30,0 ± 0,1	17,7 ± 0,3	37,2 ± 0,5	20,4 ± 0,3
40,0 ± 0,1	16,9 ± 0,3	36,3 ± 0,5	19,0 ± 0,3
50,0 ± 0,1	16,2 ± 0,3	36,6 ± 0,5	18,2 ± 0,3
60,0 ± 0,1	15,5 ± 0,3	36,1 ± 0,5	18,2 ± 0,3.
70,0 ± 0,1	14,8 ± 0,3	35,8 ± 0,5	17,4 ± 0,3

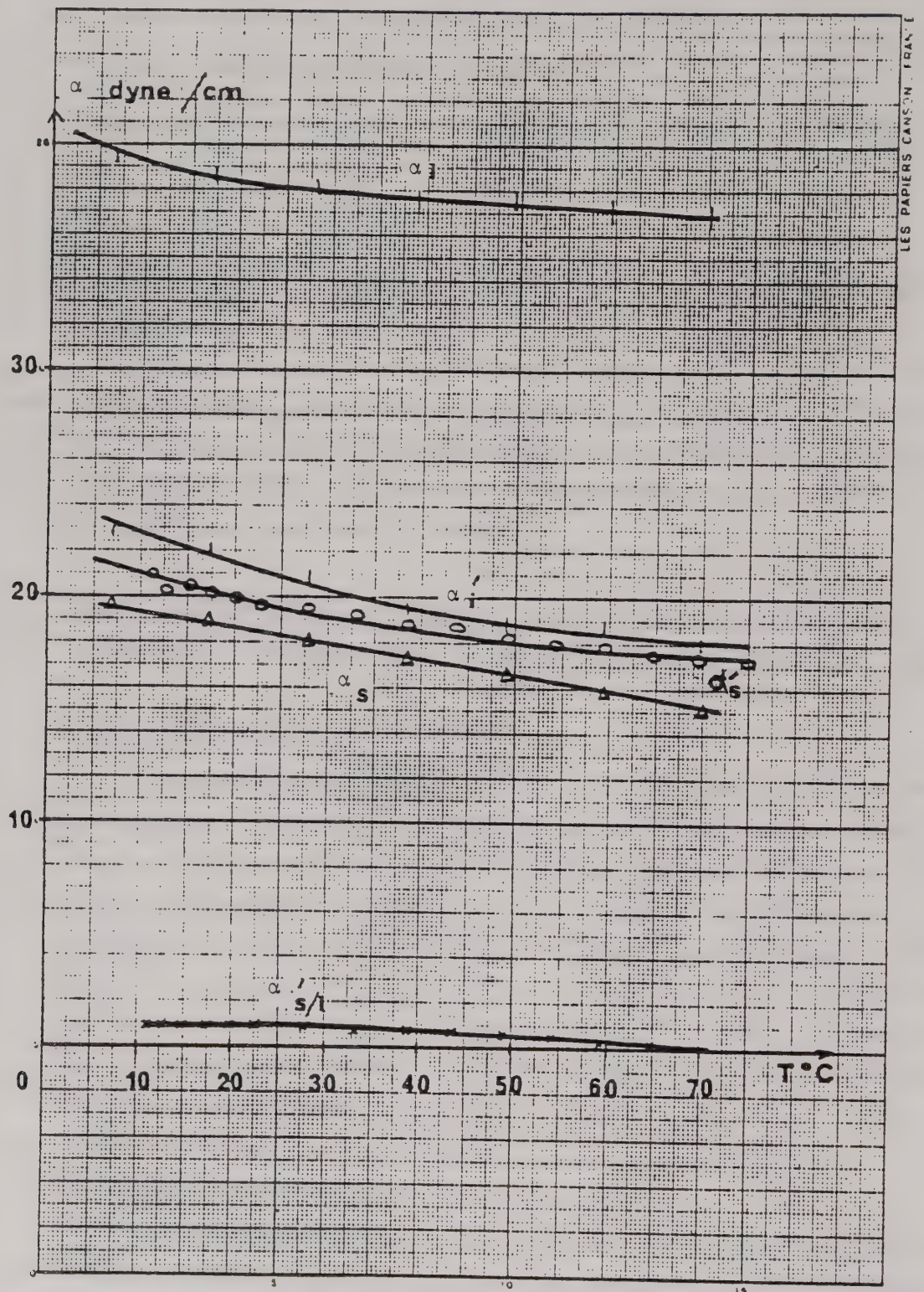
b)

t (°C)	α'_S (dyne / cm)	$\alpha'_{S/I}$ (dyne / cm)
13,9 ± 0,1	20,3 ± 0,5	0,8 ± 0,1
15,3 ± 0,1	19,8 ± 0,5	-
17,5 ± 0,1	-	-
20,0 ± 0,1	19,6 ± 0,5	-
22,5 ± 0,1	19,3 ± 0,5	-
25,0 ± 0,1	19,1 ± 0,3	-
30,0 ± 0,1	19,0 ± 0,3	-
35,0 ± 0,1	18,8 ± 0,3	0,7 ± 0,1
40,0 ± 0,25	18,4 ± 0,3	0,6 ± 0,1
45,0 ± 0,25	-	-
50,0 ± 0,25	17,8 ± 0,3	0,5 ± 0,1
55,0 ± 0,25	17,6 ± 0,3	0,5 ± 0,1
60,0 ± 0,25	17,4 ± 0,3	0,3 ± 0,1
65,0 ± 0,25	17,0 ± 0,3	0,2 ± 0,1
70,0 ± 0,25	-	< 0,2 ± 0,1
75,0 ± 0,25	16,8 ± 0,3	-

α_S : tension superficielle (huile SI 200/3)/air ;
α_I : " " 1-bromonaphtalène/air ;
α'_I : " " de la solution inférieure I/air ;
α'_S : " " de la solution supérieure S/air ;
$\alpha'_{S/I}$: " interfaciale entre les solutions à l'équilibre.

FIGURE 16

Variation thermique des tensions superficielles des liquides purs et saturés du mélange binaire



$\alpha_{S/I}$: tension interfaciale entre les solutions supérieures S et inférieure

α_{I} : tension superficielle du 1-bromonaphtalène pur

α'_{I} : tension superficielle du 1-bromonaphtalène saturé avec l'huile

α_{S} : tension superficielle de l'huile SI 200/3

α'_{S} : tension superficielle de l'huile SI 200/3 saturée avec le bromonapht

c) Méthode du diamètre rectiligne

Le tracé de la courbe $\alpha = f(C_H)$ (Figure 17) pour chaque phase permet de déterminer par extrapolation la tension superficielle critique à l'aide du "diamètre rectiligne".

Elle donne au point critique : $\begin{cases} \alpha_c = 16,6 \text{ dyne /cm} \pm 0,3 \text{ dyne/cm} \\ c_c = 35,75\% \pm 0,25\% \end{cases}$

3. Conclusion sur les tensions superficielles du mélange binaire

Nous avons étudié les tensions superficielles du mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200/3 en fonction de la température. Nous avons constaté, au cours de ce travail, les propriétés suivantes :

a) A température ambiante et pression normale, le mélange diphasique présente une tension interfaciale ayant une valeur inférieure à 1 dyne/cm.

b) Entre 10°C et 40°C environ, la variation thermique de la tension interfaciale est nulle, à la précision des mesures près. Dans cet intervalle de température, la variation de la miscibilité est négligeable.

c) Au-delà de 40°C, et jusqu'à la température critique, le quotient $\frac{d\alpha'}{dT} S/I$ est négatif. La solubilité mutuelle augmente entre les deux phases.

d) A la température critique $T_c \cong 81°C$, la tension interfaciale est nulle, à la précision des mesures près. Les deux constituants sont totalement miscibles en toute proportion.

e) La "règle d'Antonoff" est vérifiée sur le mélange binaire à l'équilibre et à la précision des mesures obtenues.

VI - ETUDE EXPERIMENTALE DU SYSTEME DIPHASIQUE TERNAIRE : BROMONAPHTALENE + HUILE SI 200/0,65 + IODONAPHTALENE

A. Etude du système ternaire diphasique

1. Définition du système ternaire

Il comprend trois éléments :

- le mono-bromonaphtalène (Tableau IV) ;
- le α-iodonaphtalène (Tableau XV) ;
- l'huile aux silicones SI 200/0,65 (Tableau V).

.../...

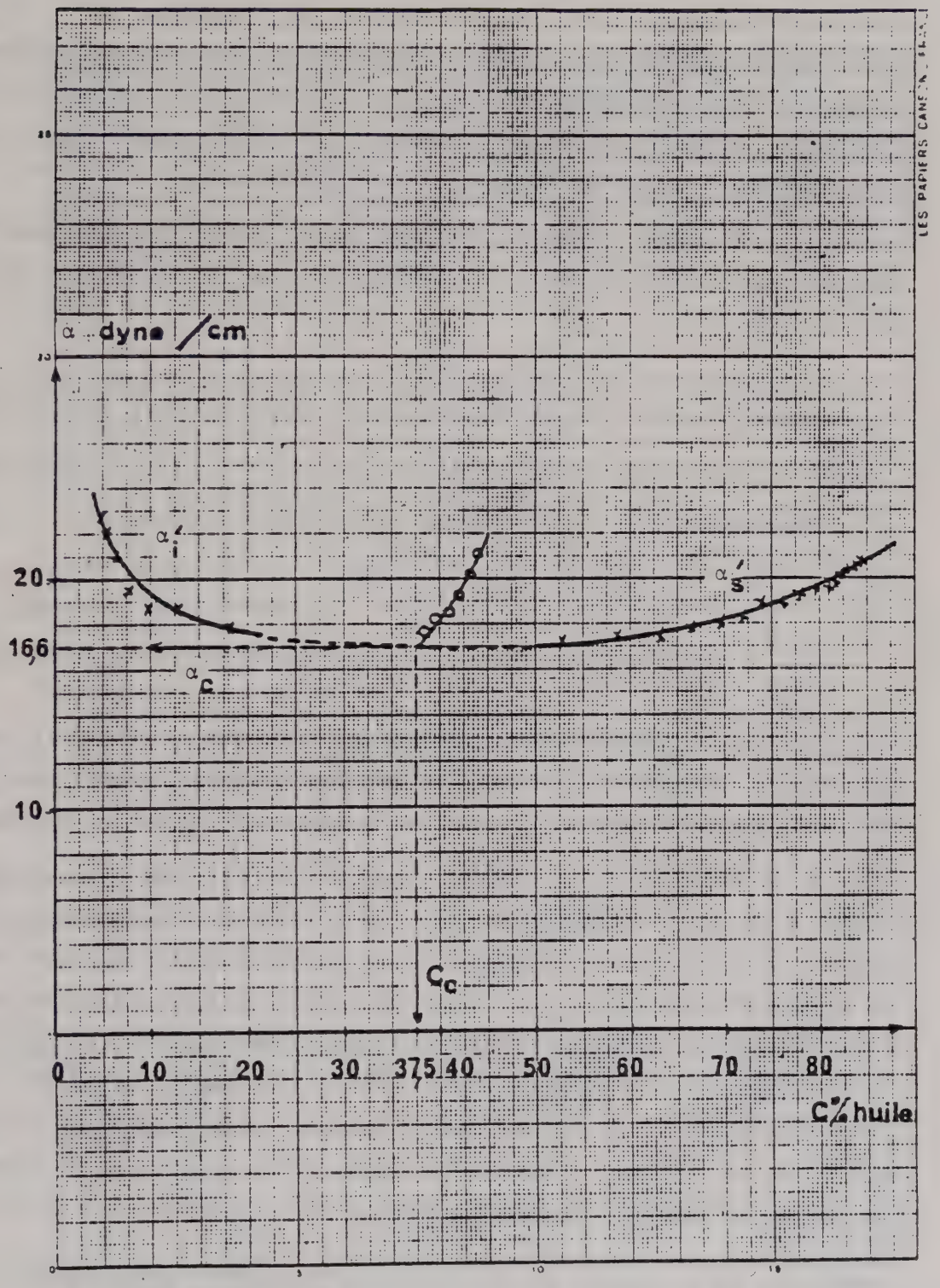
TABLEAU XIV

T (°C)	α'_I (dynes/cm) ± 0,3	b (%) ± 0,25	α'_S (dynes/cm) ± 0,3	h (%) ± 0,25	$\frac{\alpha'_b + \alpha'_h}{2}$ (dynes/cm)	$\frac{b+h}{2}$ (%) ± 0,25
10	22,2	4,75				
13,9			20,3	80,5		
15,3			19,8	80,0		
17,5			19,8	79,5		
20	21,5	5,25	19,6	79,0	20,55	42,125
22,5			19,3	78,25		
25			19,1	77,75		
30	20,4	6,25	19,0	76,25		41,25
35			18,8	74,75		
40	19,0	7,50	18,4	73,0	18,7	40,25
45			18,4	71,0		
50	18,2	9,50	17,8	69,0	18,0	39,25
55			17,6	66,5		
60	18,2	12,50	17,4	63,5	17,8	38,00
65			17,0	60,25		
70	17,4	17,50	17,0	56,00	17,2	36,75
75			16,8	50,5		

Les points b et h sont déterminés sur la courbe de coexistence des phases à la température T.

FIGURE 17

Variation des tensions superficielles des solutions supérieures et inférieures du mélange binaire bromonaphtalène + huile SI 200/3



α'_I : tension superficielle de la solution inférieure à l'équilibre.

α'_S : tension superficielle de la solution supérieure à l'équilibre.

On part d'un mélange binaire de bromonaphtalène et d'huile SI 200/0,65 et on ajoute le troisième élément : le iodonaphtalène. La température critique T_c du mélange binaire a été trouvée égale à 21,7°C pour une concentration critique de 37,5% d'huile (Figure 18). Au-dessus de T_c, le système est monophasique en toute proportion. Si on ajoute du iodonaphtalène, le système binaire précédent redevient diphasique au-delà de 21,7°C. Il a l'avantage, comme nous allons le voir plus loin, de donner lieu à un interface liquide-liquide de faible tension superficielle.

Exemple : le nombre de phases coexistentes en fonction de la quantité de iodonaphtalène ajoutée est donné par les résultats suivants, à la température de 22°C :

Bromonaphtalène	64,10	63,29	62,50	60,98	60,24	59,52	58,82
Huile SI 200/0,65	32,05	31,65	31,25	30,49	30,12	29,76	29,40
Iodonaphtalène	3,85	5,06	6,25	8,54	9,64	10,71	11,76
x	6%	8	10	14	16	18	20
N	1	2	2	2	2	2	2

Toutes les données sont exprimées en pourcentage; x est la fraction massique de iodonaphtalène dans le bromonaphtalène ; ils sont tous les deux miscibles en toute proportion ; N est le nombre de phases du système ternaire.

On constate qu'à 22°C, si la quantité du troisième élément est inférieure à 6% dans le bromonaphtalène, le système est monophasique. A 20°C, avec $x < 6\%$, le système ternaire devient diphasique. L'explication du nombre de phases en coexistence est donnée plus loin, sur le diagramme triangulaire (figure 22). Les différents points x sont représentés par des croix. On constate que pour $x = 6\%$, ce point sort du diagramme tracé à 25°C, mais reste très près de la zone de coexistence de deux phases. Il est donc normal de retrouver un système diphasique en-dessous de 25°C, c'est-à-dire pour un diagramme de coexistence tracé entre les isothermes 20°C et 25°C.

2. Définition du diagramme de coexistence d'un mélange ternaire

On emploie la méthode des coordonnées triangulaires. En supposant constantes la température et la pression, on représente graphiquement le mélange

.../...

FIGURE 18

Courbe de solubilité réciproque du mélange 1-bromonaphtalène + huile SI 200/0,65

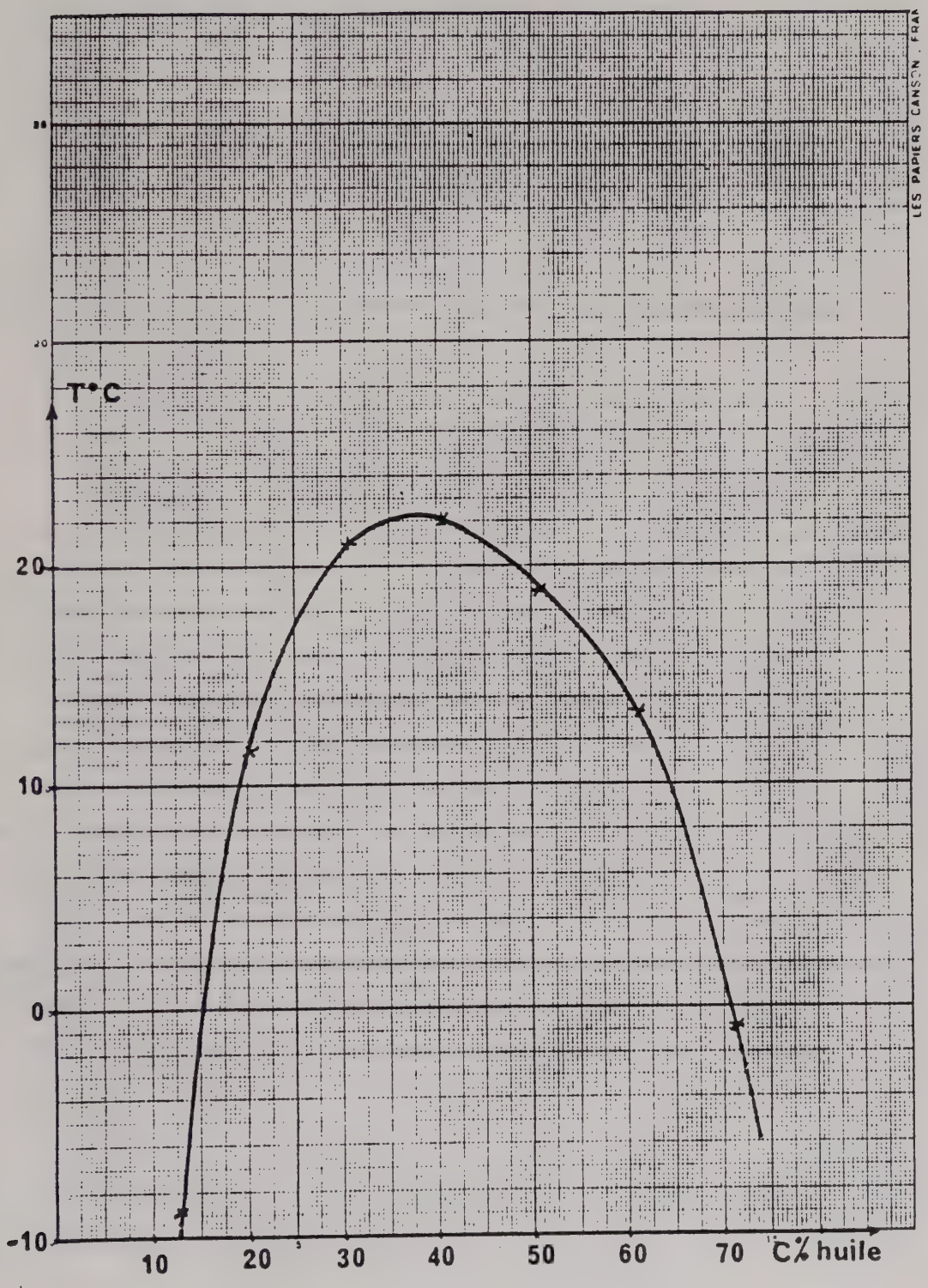
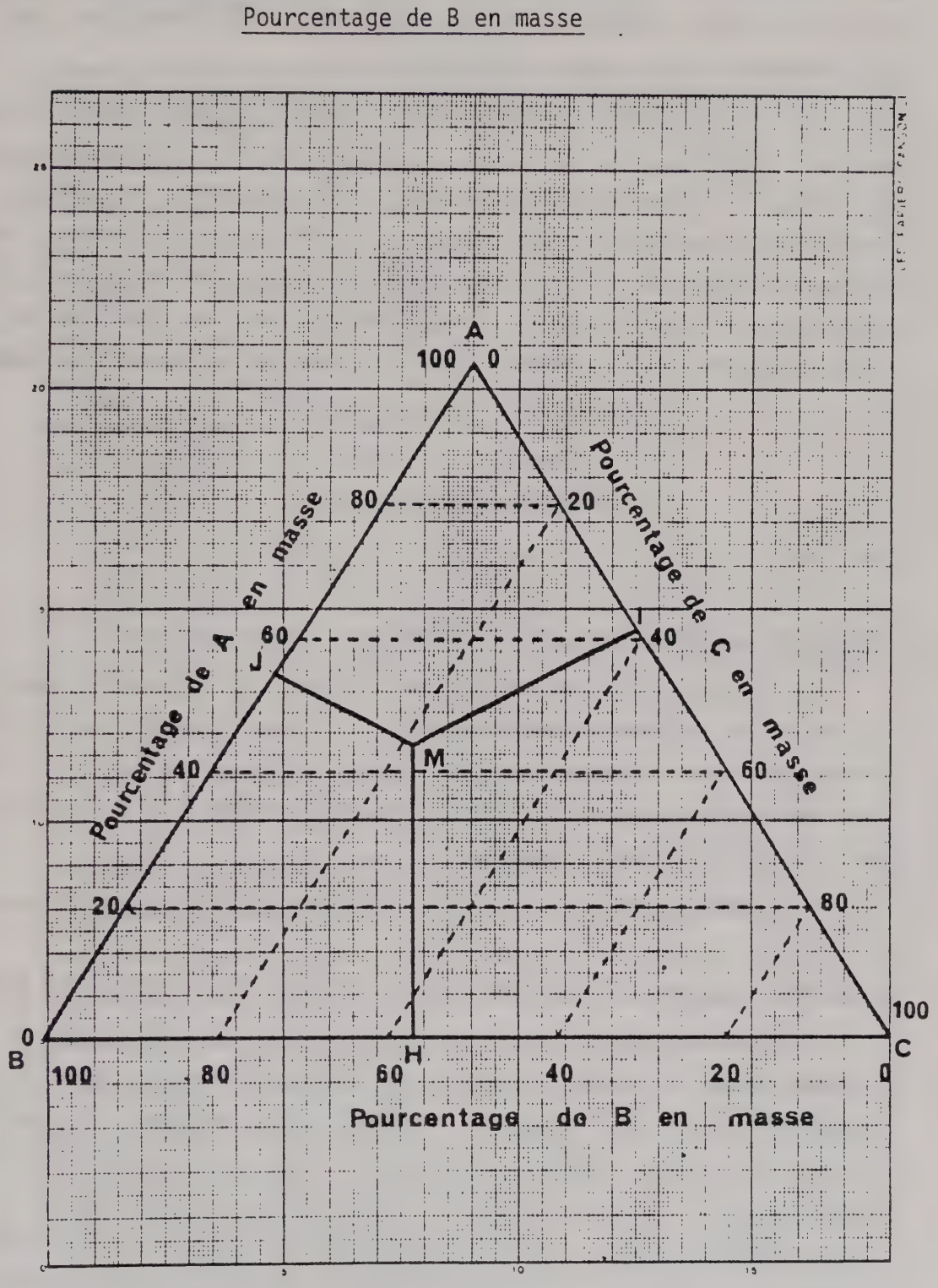


TABLEAU XV

Propriétés physiques du α-iodonaphtalène $C_{10}H_7I$ à 20°C

Masse molaire	M = 254,07 g.
Viscosité à 25°C	ν = 4,60 cSt
Point de solidification	4,2°C
Indice de réfraction	n_D = 1,70256
Tension superficielle	47,1 dyne/cm
Densité à 25°C	ρ = 1,7399 g.cm^{-3}
Conductibilité thermique	λ = qq. 10^{-4}W/cm.°C
Solubilité	alcool, benzène, éther, CS_2 Insoluble dans l'eau.
Couleur	légèrement orangé

FIGURE 19


Pourcentage de B en masse
A
100
0
80
20
60
40
40
60
20
80
0
100
B
H
C
100
80
60
40
20
0
Pourcentage de A en masse
Pourcentage de C en masse
Pourcentage de B en masse
I
J
M

par un diagramme plan : les sommets A, B, C d'un triangle équilatéral ABC sont les points figuratifs des corps purs A, B et C (figure 19). Chaque côté du triangle représente les mélanges binaires formés avec les composants marqués à ses deux extrémités.

Soit un point M à l'intérieur du triangle, représentatif d'un mélange de trois corps purs A, B, C. Abaissons de M les trois perpendiculaires MH, MI, MJ, sur les trois côtés du triangle. La somme MH + MI + MJ est constante quelle que soit la position de M à l'intérieur du triangle ABC. Les longueurs MH, MI et MJ représentent la proportion en masse de A, B, C dans le mélange. Si la hauteur du triangle équilatéral est égale à 100, le système représenté par le point M comprend pour 100 grammes de mélange :

MH grammes du constituant A
MI grammes du constituant B
MJ grammes du constituant C

avec MH + MI + MJ = 100 : hauteur du triangle ABC.

3. Détermination expérimentale du diagramme de coexistence

Il se présente en général, comme l'indique la figure 20, dans la représentation triangulaire. Les sommets B, H, I sont repsectivement le monobromonaphtalène, l'huile SI 200/0,65, et le iodonaphtalène. La courbe tracée dans le triangle équilatéral est appelée l'isotherme de solubilité du mélange. Elle délimite deux espaces :

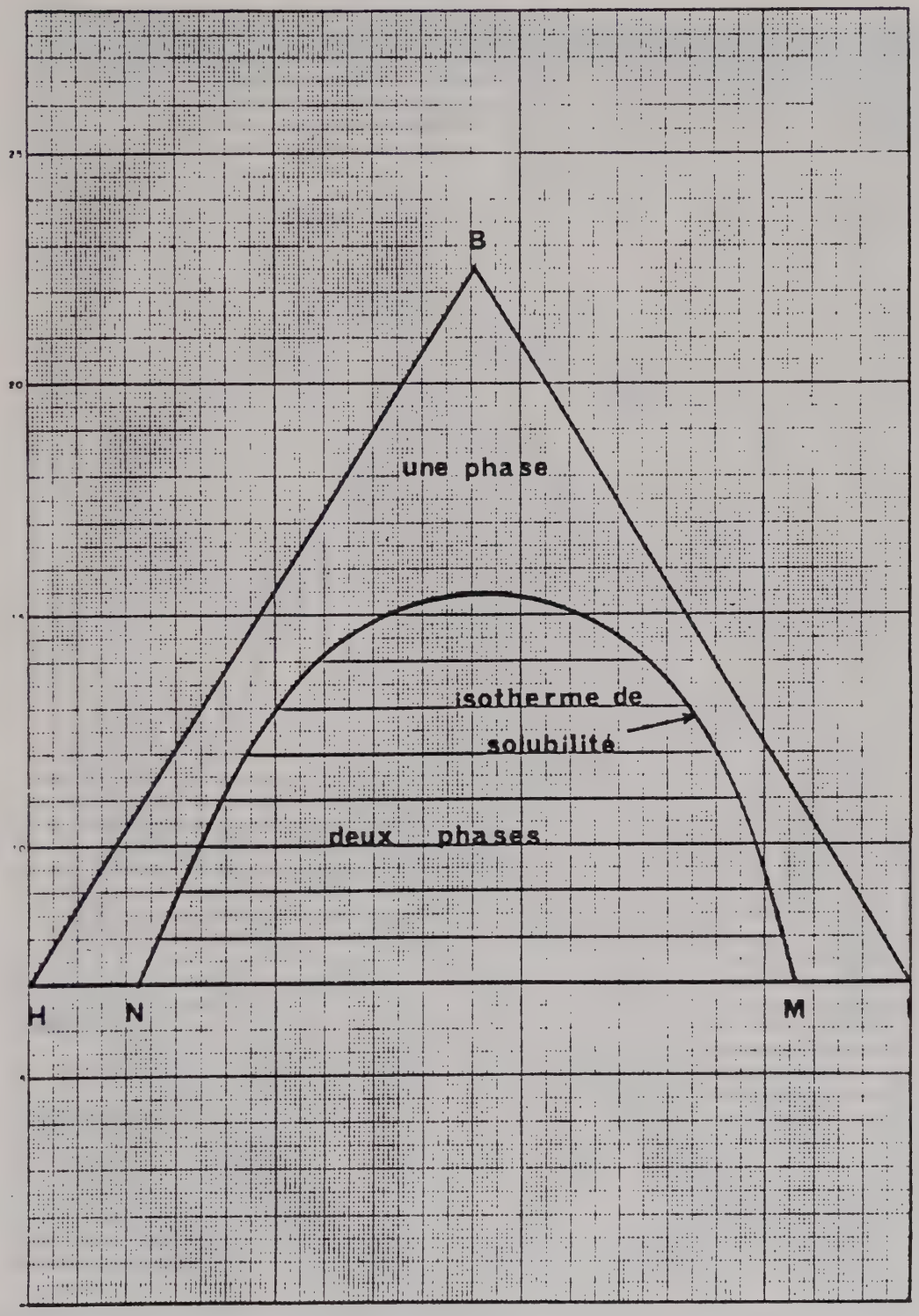
- la zone intérieure à la courbe est le domaine de coexistence de deux phases liquides ;
- la zone externe n'est le domaine d'existence que d'une seule phase liquide.

Pour déterminer l'isotherme de solubilité, on procède ainsi : on prépare à température constante, une série de mélanges binaires, constitués par le bromonaphtalène B et l'huile H, de compositions connues. Ils sont représentés par les points K_i sur la figure 21. On ajoute alors des quantités croissantes de I, et on note l'apparition du ménisque, ce qui donne le point L_i, qui représente un point de l'isotherme de solubilité à la température T. Les résultats pour le mélange ternaire sont donnés par les courbes de la figure 22 pour deux températures égales à 20°C et 25°C.

.../...

FIGURE 20

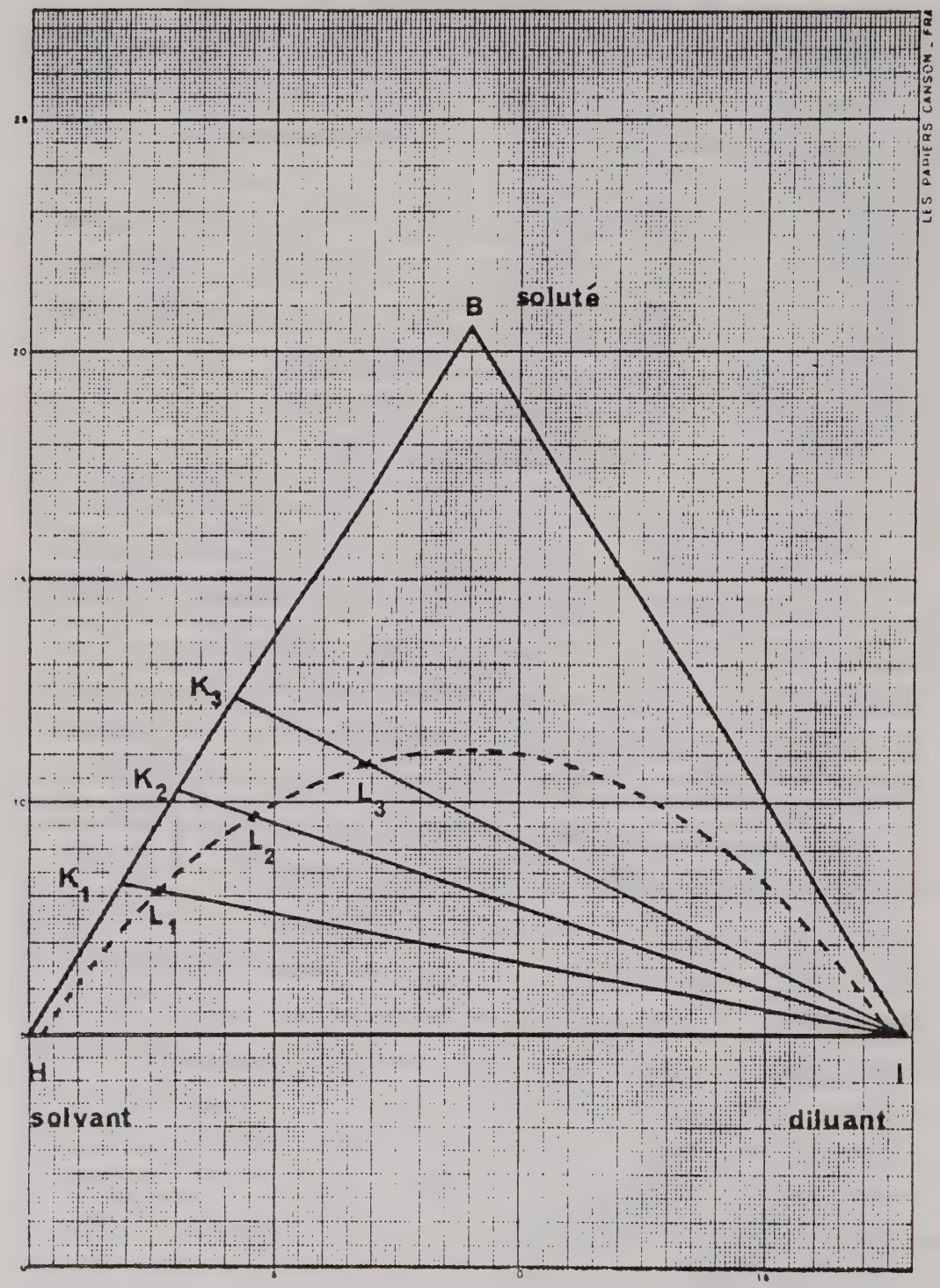
Mélange ternaire dans le cas où l'un des mélanges binaires présente une lacune de miscibilité



d'après A.W. FRANCIS "Liquid-liquid equilibrium"
Interscience Publishers.

FIGURE 21

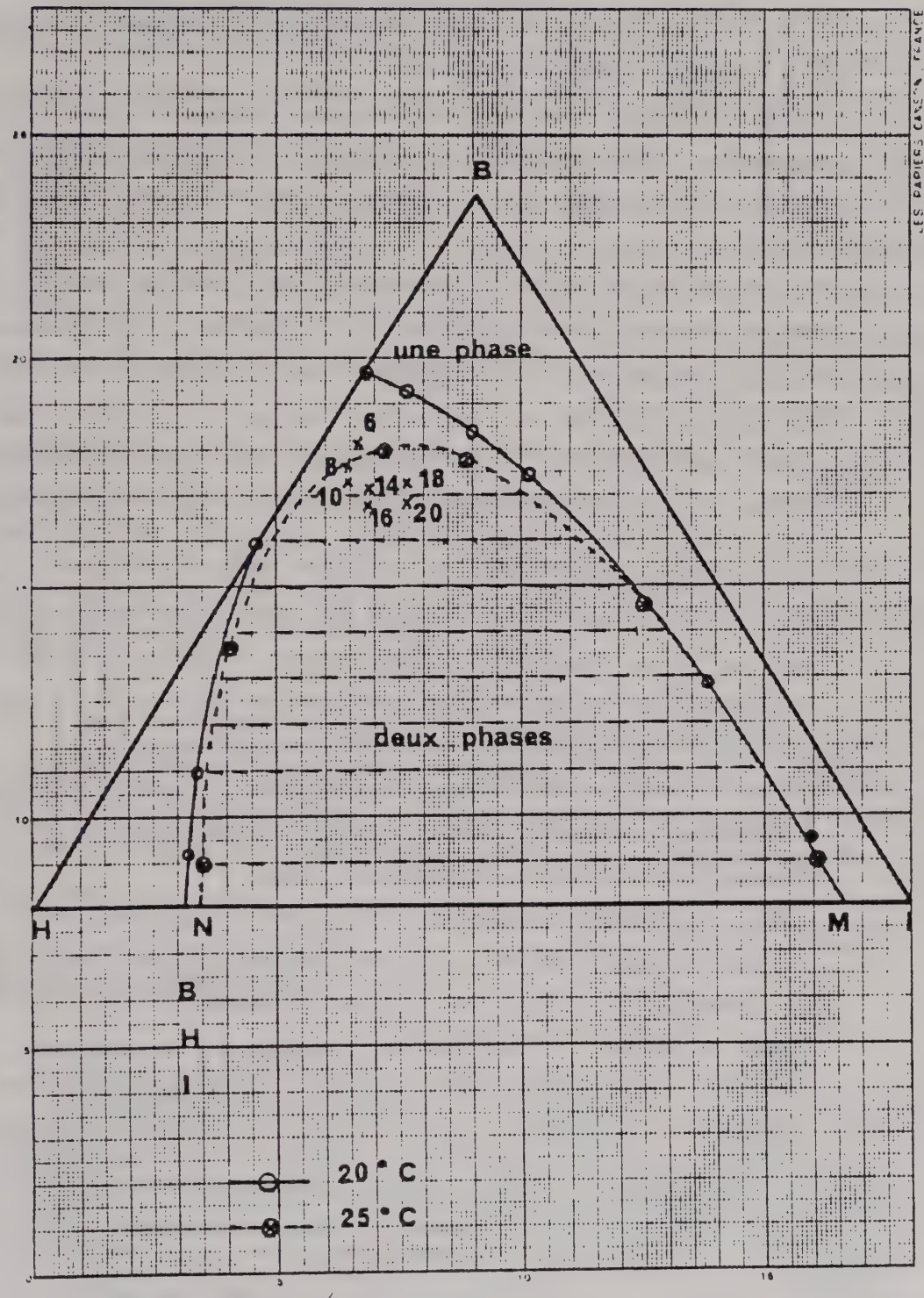
Détermination expérimentale de l'isotherme de solubilité du mélange ternaire bromonaphtalène, huile SI 200/0,65 et iodonaphtalène



Lorsque le ménisque apparaît dans le mélange, le système correspond à un point représentatif L dans le diagramme triangulaire. On construit la courbe en pointillé point par point en faisant varier la composition des corps BH et dans le mélange pour une température T.

FIGURE 22

Diagramme de solubilité du mélange ternaire



B : 1-bromonaphtalène (soluté)

H : huile SI 200/0,65 (solvant)

I : α-iodonaphtalène (diluant)

pour deux températures : 20°C

25°C

4. Interprétation des résultats

L'addition d'un diluant à un mélange binaire donné peut conduire à la formation de plusieurs types de mélanges {18}, qui sont comme suit :

- les trois constituants forment des mélanges homogènes : on obtient toujour alors une seule phase liquide ;
- l'un des mélanges binaires présente une lacune de miscibilité : il existe un domaine d'hétérogénéité correspondant à l'équilibre de deux couches liquides ; le système est diphasique (figure 20, ou figure 22, courbe à T = 20°C) ;
- deux des mélanges binaires présentent une lacune de miscibilité : le système est encore diphasique (figure 22, courbe à T = 20°C) ;
- les trois mélanges binaires présentent une lacune de miscibilité : le système est triphasique.

Avec le mélange ternaire bromonaphtalène + huile SI 200/0,65 + iodonaphtalène, les courbes expérimentales de la figure 22 montrent que :

à T = 25°C , le liquide B (bromonaphtalène) est miscible en toutes proportions avec les liquides H (huile SI 200/0,65) et I (iodonaphtalène). Mais les liquides H et I ne sont pas totalement miscibles entre eux. Le segment HN représente la solubilité de I dans le liquide H. Le segment MI représente la solubilité de H dans le liquide I. La zone hachurée partage la surface du triangle BHI en deux régions :

Dans la région extérieure à cette zone, le mélange est homogène : il y a une seule phase liquide ; comme la température et la pression sont fixées, la variance du système est deux.

Dans la région intérieure à la courbe, le mélange est hétérogène : il y a deux phases liquides. La variance du système n'est plus que de un. La température et la pression étant fixées, il reste la concentration comme paramètre à déterminer ;

à T= 20°C ; les associations BH et IH forment des mélanges partiellement miscibles, alors que B et I sont miscibles en toutes proportions.

On peut remarquer que la zone hachurée augmente dans ce dernier cas. Le système présente plus de chance d'être hétérogène à température plus basse.

.../...

B. Propriétés de la tension interfaciale du mélange ternaire diphasique

1. Généralités

Lorsqu'une substance C est ajoutée dans un système diphasique en équilibre, constitué par le mélange de liquides A et B, la tension interfaciale α_i peut augmenter, diminuer ou, quelquefois, ne pas changer {14}.

Les acides gras (acidesacétique, propionique, heptanoïque) diminuent la tension interfaciale entre l'eau et les hydrocarbures. La solubilité dans l'eau des acides gras diminue rapidement lorsque le poids moléculaire M augmente, mais leur miscibilité avec les hydrocarbures est totale. Par exemple, le α_i entre l'eau et l'heptane est de 51 dyne/cm. Lorsque l'on ajoute un acide gras pour abaisser α_i d'une certaine quantité pour ce mélange binaire, la concentration molaire de l'acide gras dans "l'huile" est indépendante du poids moléculaire M de l'acide, tandis que dans la phase aqueuse elle est d'autant plus grande que M est plus petit.

Par exemple, pour avoir α_i = 40 dyne/cm, il faut 0,007 mole/litre dans "l'huile" d'acide gras et avec C_2H_5COOH, il ne faut plus que 0,1 mole/litre dans l'eau.

α_i est beaucoup plus petit lorsque les trois composants sont des liquides organiques. Par exemple, un mélange binaire de n-Heptane et d'aniline a un α_i = 4,1 dyne/cm à 17°C. Lorsque l'on ajoute du chloroforme à raison de 25% de $CHCl_3$ dans chaque phase, le α_i devient égal à seulement 0,3 dyne/cm à 17°C.

2. Mesures expérimentales

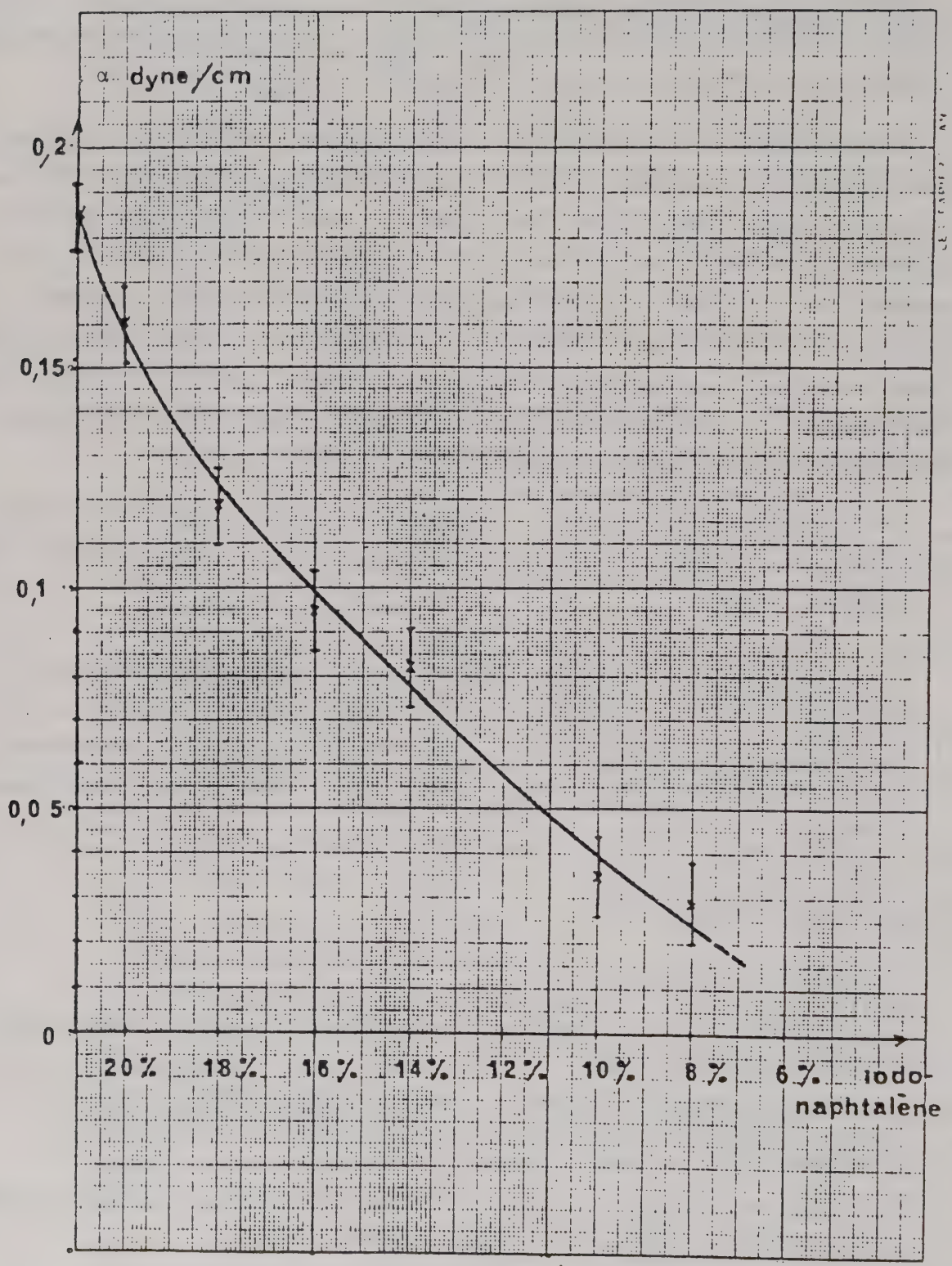
a) Tensiomètre à balance

Ces mesures ont été faites au laboratoire de Madame DUPEYRAT à PARIS VI. Il a été utilisé une balance de grande précision, thermostatée à ± 0,5°C. La précision des mesures dépend de plusieurs paramètres qui sont :

- la température : elle est donnée à 2,5% près ;
- la finesse de l'étrier : son diamètre est de 0,2 mm ; il pesait environ 0,3 g et était constitué de platine iridié à 22% ;
- la vitesse d'arrachement : une vitesse lente a été choisie ;
- le parallélisme entre l'étrier et l'interface liquide-liquide : il est vérifié au catéthomètre ;

FIGURE 23

Tension interfaciale du mélange ternaire en fonction de la concentration d'iodonaphtalène par rapport au bromonaphtalène dans ce mélange



La proportion d'huile 0,65 était de 50% par rapport au bromonaphtalène au départ.

T = 21°C ± 0,5°C

- la propreté des liquides : ils sont filtrés au travers de verre fritté sous pression avant d'être mélangés ;
- la précision de la balance de mesure : elle égale à ± 0,005 mg.

Les mesures effectuées nous permettent de penser que la sensibilité de l'appareil était de l'ordre de $\pm 5 \cdot 10^{-3}$ dyne/cm. Les résultats sont donc donnés à 10% près, ce qui est une valeur courante dans ce genre de mesures.

La courbe de la figure 23 représente l'évolution de la tension interfaciale en fonction du pourcentage de iodonaphtalène dans le bromonaphtalène à la température de 21°C. On constate que lorsque la proportion du troisième élément - l'iodonaphtalène - diminue dans le mélange, la tension interfaciale diminue. Ceci est normal. La proportion d'huile SI 200/0,65 étant de 50% par rapport au bromonaphtalène, on a, d'après la courbe de démixtion de ce mélange binaire (figure 18), une température limite de 18,5°C à ne pas dépasser. Au-delà de cette température, le mélange binaire est monophasique. Il faut s'attendre donc à ce que la tension interfaciale tende vers zéro à 21°C lorsque la proportion d'iodonaphtalène diminue.

b) Mesure de la tension interfaciale du mélange ternaire par diffusion de la lumière

Pour vérifier nos mesures, effectuées sur la balance de grande précision de Madame DUPEYRAT, nous avons mesuré la tension interfaciale d'un mélange ternaire contenant simplement 8% de iodonaphtalène, au laboratoire de l'E.N.S. de la rue d'Ulm, par la méthode de l'étude du spectre de la lumière diffusée {20}.

Les méthodes classiques (tensiomètre à balance entre autres) ne peuvent atteindre les tensions interfaciales en-dessous de 0,01 dyne/cm, excepté la technique de la goutte tournante {19}. Mais au-dessous du centième de dyne/cm cette dernière manque de fiabilité. D'ailleurs, elle n'est pas applicable ici à cause de la nature corrosive de nos liquides.

Le principe de la mesure des faibles tensions interfaciales à partir de la mesure du spectre de la lumière diffusée est le suivant {20} : l'interface entre deux liquides n'est en effet jamais parfaitement plan. Du fait des fluctuations thermiques, un tel interface se comporte vis-à-vis de la lumière comme une surface rugueuse dont l'amplitude des rugosités est très faible vis-à-vis de la longueur d'onde de la lumière incidente. Typiquement, l'amplitude des fluctuations de l'interface est de l'ordre de 10 Å. De plus, ces fluctuations vont évoluer dans le temps. L'étude de l'évolution temporelle des fluctuations peut être effectuée en utilisant la théorie hydrodynamique qui fait intervenir les forces de capillarité, qui tendent à s'opposer à la déformation de l'interface et les forces de viscosité responsa-

../..

bles de l'amortissement du mouvement du liquide. Ces phénomènes étant de nature aléatoire, ils seront caractérisés par leurs valeurs moyennes et leurs fonctions de corrélation. Ces quantités sont calculées par des méthodes de thermodynamique statistique. On trouve ainsi qu'il existe des fluctuations qui peuvent se propager tout en s'amortissant, et d'autres qui s'amortissent sans se propager. On peut, d'autre part, décomposer une fluctuation quelconque de l'interface en une série de Fourier. On peut alors isoler un mode de vecteur d'onde $\vec{q}$ ($q = \frac{2\pi}{\lambda}$) . Cette fluctuation se comporte vis-à-vis d'un faisceau de lumière incident comme un réseau de phase qui diffracte. La direction de la lumière diffractée dépend de la direction et du module de $\vec{q}$. De plus, ce réseau de phase évolue dans le temps. La lumière diffractée portera donc l'empreinte de l'évolution temporelle de ce réseau. L'évolution temporelle d'une fluctuation de vecteur d'onde $\vec{q}$ sera donc donnée par le spectre de la lumière diffusée. Une telle étude permet de remonter, à partir du spectre de la lumière diffusée, au coefficient de tension superficielle.

Les résultats obtenus sont les suivants :

$T = 20°C \pm 0,5°C$ $\qquad \alpha_i = 0,05$ dyne/cm $\pm 0,005$ dyne/cm

$T = 21°C \pm 0,5°C$ $\qquad \alpha_i = 0,03$ dyne/cm $\pm 0,003$ dyne/cm

Ils recouvrent ceux obtenus par la méthode classique de l'arrachement d'un étrier de platine sur une balance de grande précision (± 0,005 dyne/cm)

3. Etude de la tension interfaciale en fonction de la température

On emploie le même mode opératoire que pour le système binaire diphasique. Un mélange ternaire contenant 24% de iodonaphtalène dans le bromonaphtalène a donné, comme variation thermique de la tension interfaciale, la courbe de la figure 24. Elle montre une variation quasiment linéaire entre 24°C et 28°C, avec une pente de l'ordre de $- 8 \cdot 10^{-3}$ dyne/cm.dg, pente relativement faible, qui dépend d'ailleurs de la quantité de iodonaphtalène dans le mélange. Par contre, entre 21°C et 24°C, la pente devient très grand Le comportement en fonction de la température de la tension interfaciale devient extrêmement variable, lorsque l'on s'éloigne de la courbe de solubilité du mélange ternaire, contrairement d'ailleurs, mais avec une pente moin grande, au mélange binaire lorsque l'on s'approche de la température critiqu (voir courbe $\sigma'_{S/I}$, figure 16).

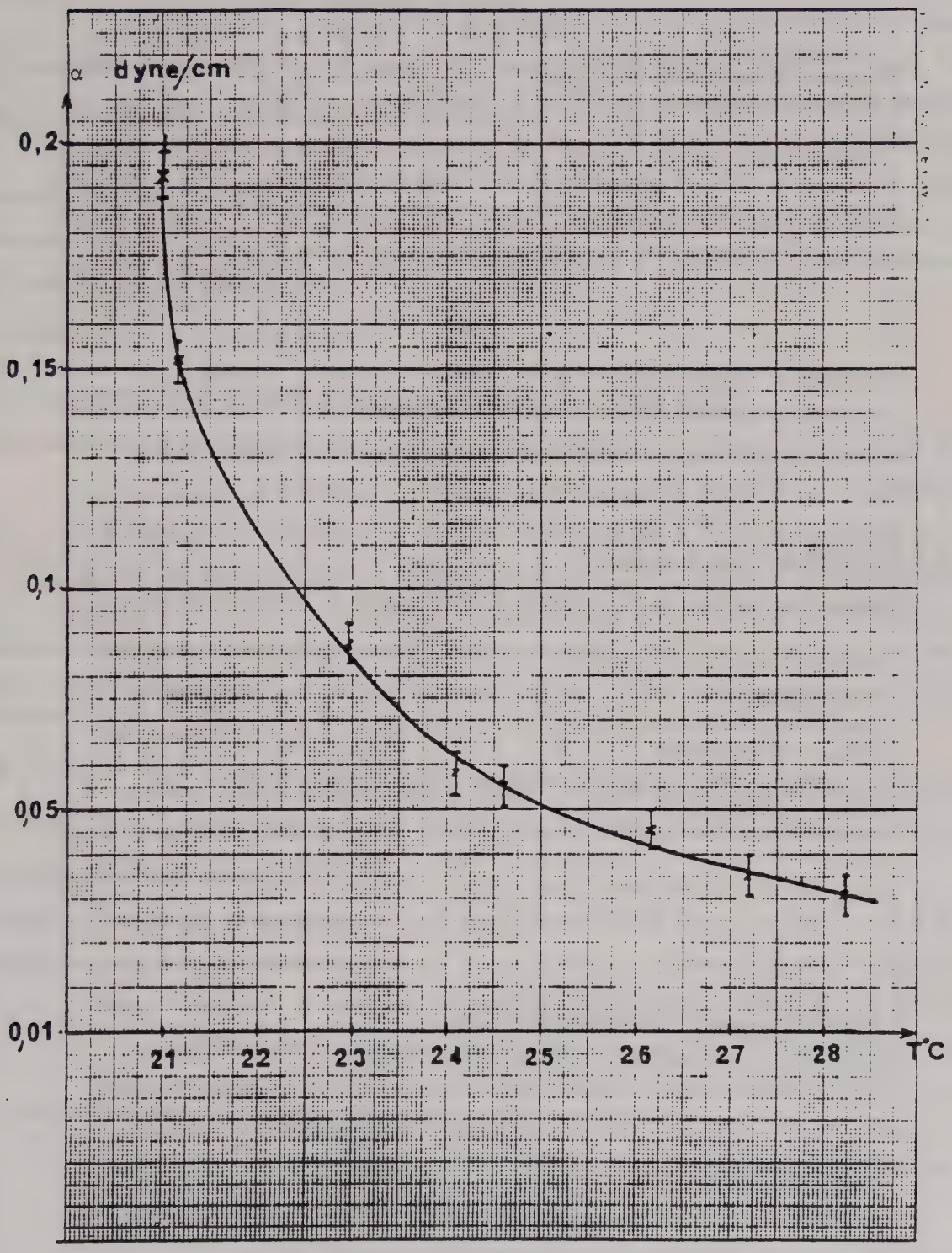
4. Conclusion sur le mélange ternaire

L'adjonction d'un troisième constituant dans le mélange binaire précédent a permis d'abaisser d'une façon considérable la tension interfaciale

../..

FIGURE 24

Tension interfaciale du mélange ternaire en fonction de la température



Mélange 24% de iodonaphtalène dans le bromonaphtalène.

bromo 54%

iodo 13%

huile 33%

TABLEAU XVI

A) Mélange binaire à 20°C

Mono-bromonaphtalène + huile SI 200/3

Constantes	ν	n	ρ	α	ν_1/ν_2	Δn	$\Delta \rho$
Phase supérieure	2,8	1,433	1	19,6	0,82	0,202	0,44
Phase inférieure	3,4	1,635	1,44	0,8			

	Basse fréquence	Haute fréquence
Rapport d'amplification pour une épaisseur donnée de la phase supérieure	2,77	25

B) Mélange ternaire à 20°C

Mono-bromonaphtalène + huile SI 200/0,65 + iodonaphtalène (8%)

Constantes	ν	n	ρ	α	ν_1/ν_2	Δn	$\Delta \rho$
Phase supérieure	0,9	1,46	0,97	16,8	0,39	0,09	0,23
Phase inférieure	2,3	1,55	1,20	0,02			

	Basse fréquence	Haute fréquence
Rapport d'amplification pour une épaisseur donnée de la phase supérieure	4,22	840

du système diphasique. Ainsi, à la température ambiante, on obtient une tension environ trente fois plus faible à 21°C, lorsqu'on ajoute du iodonaphtalène à raison de 8% dans le bromonaphtalène. En plus de cet avantage important, le nouveau système acquiert des propriétés physico-chimiques (indices, densités, viscosités) plus favorables pour l'utiliser comme transformateur d'images infrarouges (voir tableau XVI).

D'autre part, lorsque le mélange ternaire se trouve à une température inférieure à 23°C, la tension interfaciale devient sensible aux variations thermiques. Cette propriété peut expliquer le comportement temporel du mélange ternaire ; nous verrons en effet que l'interface oscille de part et d'autre de sa position d'équilibre lorsqu'elle est soumise à une impulsion extérieure. Ce phénomène n'a jamais été observé avec le mélange binaire, qui a une tension interfaciale constante à la température ambiante (voir figure 16).

VII - CONCLUSION GENERALE SUR LES MELANGES DIPHASIQUES

Nous avons étudié, dans ce chapitre, un système diphasique constitué par un mélange de deux liquides partiellement miscibles, capables de donner une tension interfaciale faible, inférieure à 1 dyne/cm, dans un large domaine de température. L'étude théorique avait montré précédemment tout l'intérêt d'utiliser un système diphasique plutôt que monophasique. En effet, l'interface liquide-liquide amplifie par couplage hydrodynamique l'amplitude de la déformation de la surface libre, c'est-à-dire celle qu'aurait un système monophasique.

Nous avons trouvé aussi deux liquides, non seulement capables de donner une tension interfaciale faible, mais pouvant satisfaire à la fois les deux conditions suivantes :

- D'une part la possibilité de détecter par voie optique, et d'une façon simple, la déformation de l'interface liquide-liquide. On mélange alors deux liquides d'indices de réfraction très différents, de telle sorte que l'on puisse réaliser une réflexion totale sur l'interface liquide-liquide. La différence d'indice des deux phases coexistentes est de 0,23 à 20°C. Elle est suffisante pour pouvoir obtenir une réflexion totale sous un angle de 60° pour une lumière visible se propageant dans le milieu d'indice de réfraction le plus élevé.

- D'autre part, une stabilité mécanique satisfaisante, de sorte que lorsqu'on secoue le système diphasique, on retrouve le plus rapidement possible l'interface liquide-liquide. On mélange pour cela deux liquides ayant des densités très différentes. Les deux liquides se démixtent alors rapi-

dement sous l'action de la pesanteur, pour redonner le système diphasique précédent. La différence de densités entre les phases coexistentes est égale à $\Delta\rho = 0,44$ à 20°C. Il faut environ dix secondes pour que le système binaire reprenne son état d'équilibre.

Nous avons montré aussi que l'on pouvait encore diminuer la tension interfaciale du système binaire, si on ajoutait un troisième élément judicieusement choisi, de telle sorte que l'on puisse satisfaire aux deux conditions précédentes (voir tableau XVI). En ajoutant ainsi 8% de iodonaphtalène dans un mélange binaire comprenant du bromonaphtalène plus de l'huile SI 200/0,65, nous avons obtenu une tension interfaciale égale à 0,03 dyne/cm à 21°C, au lieu de 0,8 dyne/cm, soit environ une valeur trente fois plus faible. Il n'est pas impossible de descendre plus bas encore, si on diminue la quantité de iodonaphtalène dans le mélange. Mais alors les indices de réfraction des phases supérieures et inférieures se rapprochent et il devient difficile de détecter optiquement les déformations de l'interface. Il est nécessaire, par conséquent, de trouver un compromis entre la tension interfaciale et la différence d'indice entre les deux solutions.

Bien que d'un emploi moins facile :

- l'huile SI 200/0,65 est très volatile,
- la différence d'indice de réfraction est moins favorable à une détection optique (voir tableau XVI),

l'emploi d'un mélange ternaire diphasique permet d'améliorer l'amplification de la déformation de l'interface liquide-liquide, et par conséquent d'augmenter la sensibilité thermique du système diphasique.

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE IV

{1} A.W. ADAMSON - "Physical chemistry of surfaces", 3ème édition Wiley.

{2} J. JASPER - "The surface tension of pure liquid compounds", Journal of Physical and Chemical Data, V. 4, pp. 841-1010, (1972).

{3} J.J. BIKERMAN - "Physical surfaces", p. 82, (1970).

{4} F.J. WEGNER - Phys. Rev. B 5 , 4529 (1972).

{5} S.C. GREER - Phys. Rev. A 14 , 1770 (1976).

{6} D. BEYSSENS - J. Chem. Phys. 71, 2557 (1979).

{7} J.C. LE GUILLOU, J. ZIM-JUSTIN - Phys. Rev. Lett. 39; 95 (1977).

{8} M. TOURNARIE - J. Phys. (Paris) 30, 47, (1969).

{9} PROVOST - "Chimie Générale", Masson, pp. 223-225.

{10} I. PRIGOGINE et R. DEFAY - "Thermodynamique chimique", p. 255.

{11} D.T. JACOBS et Al. - Chemical Physics, 20, 219-226 (1977).

{12} E.S.R. GOPAL et Al. - Phys. Rev. Lett. 32, 284 (1974).

{13} FLEURY et MATHIEU - "Thermodynamique", Masson.

{14} J.J. BIKERMAN - "Physical surfaces", p. 118, (1970).

{15} C. DOMB dans "Phase Transitions and Critical Phenomena", Edited by C. Domb et M.S. Green (Academic, New-York), Vol. 3, (1974).

{16} Th. YOUNG - Phil. Trans. 1805, p. 65.

{17} Documentation "Prolabo Instruments".

{18} Alfred W. FRANCIS - "Liquid-liquid equilibrium", Interscience Publishers.

{19} Tensiomètre à goutte tournante, Documentation.

.../...

{20} J. MEUNIER - Thèse d'Etat, Université PARIS VI (1971)

A. POUCHELON, J. MEUNIER, D. LANGEVIN, D. CHATENAY, A.M. CAZABAT - J. Phys. Letters, 76, 277, (1980).

A.M. CAZABAT, D. LANGEVIN, A. POUCHELON - J. of Colloïd. Inter. Science 73, 1, (1980).

{21} F. MAST, V. LA ROCHE - Int. Proc. Int. - Electro-Optical Design Birghton, 1971.

CHAPITRE V

ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPONSE DU MELANGE BINAIRE DIPHASIQUE BROMONAPHTALENE + HUILE SI 200/3 A UN OBJET SPATIALEMENT PERIODIQUE

I - INTRODUCTION

On étudie dans ce chapitre les performances de la méthode optique permettant de visualiser la déformation de l'interface liquide-liquide.

Nous avons montré au chapitre III que lorsque le système bicouche est irradié par un rayonnement absorbé, spatialement périodique, une modulation des interfaces de la couche supérieure apparaît. Si l'intensité de la perturbation thermique est faible, la modulation des interfaces a un profil sinusoïdal, de même période que celle de la perturbation thermique. Nous avons montré également que la modulation de l'interface liquide-liquide était beaucoup plus grande que celle de la surface libre. Il est par conséquent plus facile de détecter les variations de l'interface liquide-liquide, plutôt que celles de la surface libre du système diphasé. Les phases liquides du système étant transparentes, le problème revient donc à visualiser une mire de phase à profil sinusoïdal produite par un rayonnement absorbé spatialement périodique.

En hydrodynamique, les méthodes optiques couramment employées pour visualiser la convection d'un fluide sont basées sur la variation de phase de la lumière éclairant le fluide, dûe à une variation de son indice de réfraction et/ou à une variation de son épaisseur lorsque l'une de ses interfaces est libre. On a la relation suivante :

$$\Delta\Phi = \frac{2\pi}{\lambda}\,\Delta(ne) = \frac{2\pi}{\lambda}\,(e\,\Delta n + n\,\Delta e)$$

$\Delta\Phi$ est la variation de phase de la lumière de longueur d'onde λ, éclairant le fluide convectant d'indice n et d'épaisseur e. Lorsque le fluide isotrope a une surface libre et qu'il est mince, $n\Delta e$ est en général beaucoup plus grand que $e\Delta n$. Dans ces conditions, la variation de phase $\Delta\Phi$ que subit la lumière traversant un fluide convectant mince avec une surface libre est :

$$\Delta\Phi \cong \frac{2\pi}{\lambda}\,n\Delta e$$

Dans nos expériences, les variations Δn de l'indice de réfraction étant négligeable (nous verrons au chapitre VI que l'échauffement du système par un rayonnement infrarouge est de l'ordre seulement du centième de degré), nous avons visualisé les déformations de l'interface liquide-liquide.

../..

II - JUSTIFICATION DU CHOIX DE LA METHODE UTILISEE

L'interface liquide-liquide étant un objet de phase, il est nécessaire pour la visualiser d'utiliser une méthode optique classique comme par exemple l'interférométrie, la strioscopie ou tout simplement l'ombroscopie.

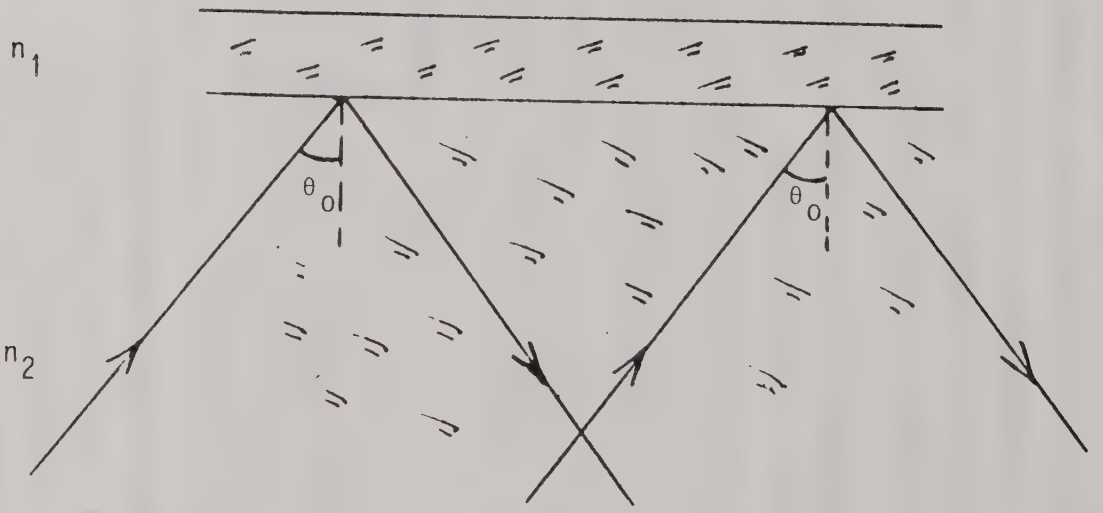
Etant donné la grande différence d'indice de réfraction entre les phases liquides, une réflexion totale sur l'interface (figure 1), pour une lumière visible se propageant dans le milieu le plus réfringeant - la solution inférieure - vers le milieu le moins réfringeant - la solution supérieure - est envisageable. Elle est d'ailleurs beaucoup plus sensible que celle utilisant la transmission sous incidence normale du même faisceau de lumière, à travers les deux milieux (figure 2).

L'interférométrie, la strioscopie et l'ombroscopie ont donc été essayées. Les deux premières méthodes n'ont pas été retenues parce que l'interface liquide-liquide est instable mécaniquement et thermiquement. En effet, celle-ci est sensible aux vibrations mécaniques et aux fluctuations thermiques du milieu extérieur du fait de sa faible tension interfaciale.

En outre, bien que la tension interfaciale soit très faible comme nous l'avons vu au chapitre IV, l'interface liquide-liquide n'est pas rigoureusement plane. Elle présente une légère courbure, à cause du petit angle de raccordement sur les parois de la cuve, contenant le mélange. Le rayon de courbure est grand. Il est de l'ordre de plusieurs mètres avec une cuve en verre de 60 mm de diamètre. Or, sa courbure varie avec la température du système. Il est donc impossible d'obtenir dans ces conditions, une teinte plate stable par interférométrie.

Nous verrons dans ce chapitre que la modulation de l'interface est détectable si la période de la perturbation thermique est supérieure à 0,3 mm et si l'amplitude de la modulation est de l'ordre de quelques dixièmes de microns. Ces résultats donnent une pente moyenne pour la déformation d'environ 3'. La strioscopie est une méthode mal adaptée pour observer de tels défauts. En outre, l'image de la source d'éclairage, obtenue par réflexion totale du faisceau de lecture sur l'interface n'est pas stable,

Figure 1



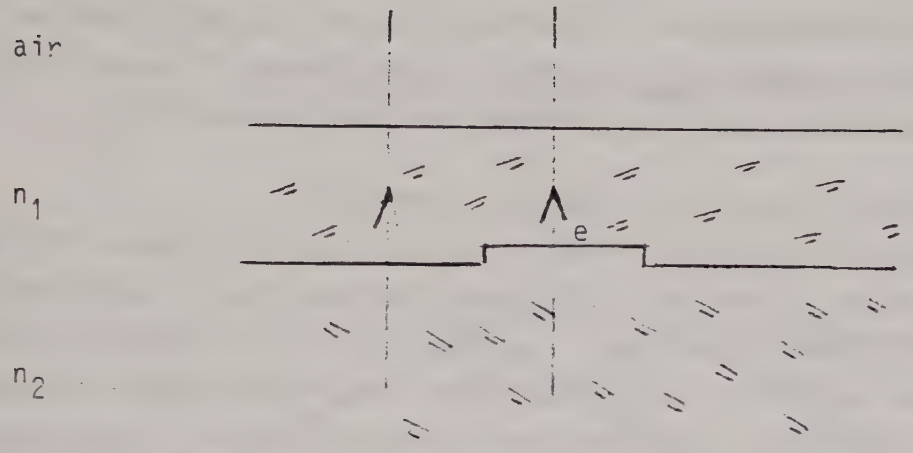
Réflexion totale du faisceau d'éclairage sur l'interface liquide-liquide

Mélange binaire Bromonaphtalène + huile 3 cst

$n_1 = 1,4335$ $n_2 = 1,6352$ à 20°C

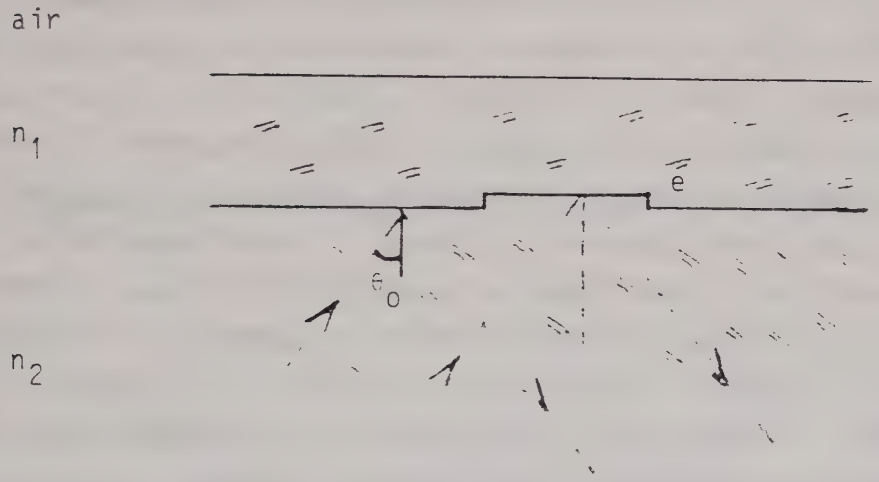
Angle limite : $\theta_o = \text{Arc} \sin \frac{n_1}{n_2} \neq 61°2$

Figure n° 2



a) Lecture de la déformation par transmission

$$\Delta\Phi_T = \frac{2\pi}{\lambda}(n_2 - n_1)e$$



b) Lecture de la déformation par réflexion totale

$$\Delta\Phi_R = \frac{2\pi}{\lambda}\, 2n_2\, e \cos\theta_o \cong \frac{2\pi}{\lambda}\, n_2\, e \quad \text{pour } \theta_o \cong 60°$$

La déformation de l'interface (air, n_1) n'a pas été représentée dans ce schéma, parce qu'elle est négligeable, devant celle de l'interface liquide-liquide.

$\Delta\Phi_R \cong 6\Delta\Phi_T$ avec les valeurs de la figure 1.

car l'interface évolue au cours du temps. Il est donc impossible d'effectuer un filtrage sur le faisceau de lecture. Nous verrons au chapitre VI que la strioscopie permet cependant, d'augmenter le contraste de l'image infrarouge sans toutefois en améliorer sa netteté.

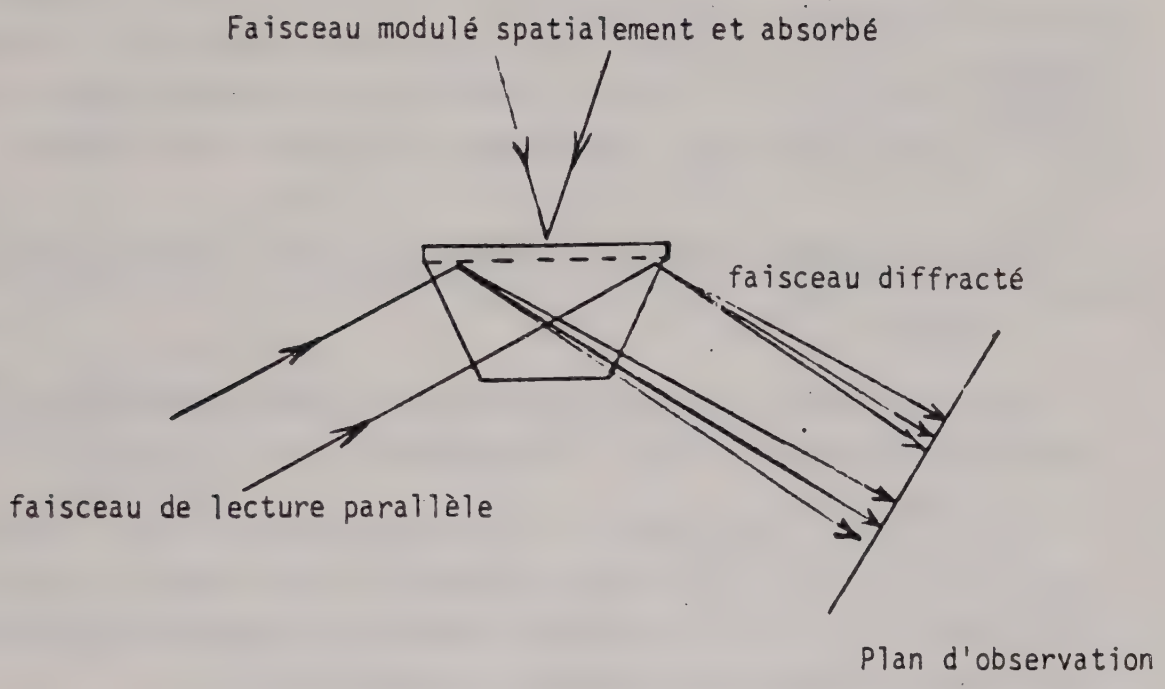
L'ombrologie ou méthode d'ombre, a été la seule méthode retenue pour visualiser les déformations de l'interface liquide-liquide. C'est une méthode simple couramment utilisée dans les expériences d'instabilités hydrodynamiques. Cependant, elle présente certains inconvénients :

- elle donne rarement les résultats quantitatifs.
- il n'existe pas de plan image au sens Classique du terme. On observe l'ombre de l'objet diffractant le faisceau lumineux. Nous l'appelerons "image d'ombre". Dans ce chapitre, nous observerons la lumière diffractée par l'interface modulée sinusoïdalement dans des plans situés à différentes distances de l'interface (figure 3) pour différents pas de la modulation. Le contraste des "images d'ombres" observées ne sera pas très bon en général, puisque comme nous l'avons vu à propos de la strioscopie, il est difficile de concevoir un filtrage du faisceau lumineux d'éclairage.

- l'ombroscopie par réflexion totale est sensible à la courbure de l'interface $\mathcal{C} = k^2 \bar{\xi}_{12}$. La focalisation des rayons lumineux dépendra donc de la fréquence spatiale de la perturbation thermique et de l'amplitude de la modulation. Cependant, comme les résultats du chapitre III le montrent l'ombroscopie par réflexion semble être la méthode la plus appropriée. En effet, la courbure reste importante lorsque la fréquence spatiale de la modulation augmente, alors que l'amplitude de $\bar{\xi}_{12}$ diminue (l'interférométrie par réflexion est sensible à l'amplitude de la modulation) et que la pente $\frac{d\bar{\xi}_{12}}{dx}$ des déformations (la strioscopie par réflexion est sensible à la pente) restent faibles. En outre, la courbure (voir figure n° 15 - chapitre III) reste sensiblement la même pour un large domaine de fréquences spatiales. Cette propriété est d'autant mieux vérifiée que l'épaisseur de la solution est faible. A niveau d'entrée donné, il existera donc un plan d'observation situé à la distance $\frac{1}{\mathcal{C}}$ de l'interface liquide-liquide sur lequel on observera un grand nombre de fréquences spatiales.

../..

Figure n° 3



Observation du faisceau diffracté par l'interface liquide-liquide

III - ETUDE OPTIQUE DE LA REPONSE DU SYSTEME DIPHASIQUE A UNE PERTURBATION THERMIQUE SPATIALEMENT PERIODIQUE

1 - Introduction

En l'absence de perturbation extérieure, l'onde incidente plane subit la réflexion totale sur l'interface plane liquide-liquide. Sur l'écran d'observation situé à la distance D, on observe une répartition d'intensité uniforme (figure 1). Sous l'action d'une perturbation thermique sinusoïdale de faible amplitude, l'interface prend un profil sinusoïdal de même période (figure 3). Nous nous proposons dans ce paragraphe, de calculer la nouvelle répartition d'intensité à partir du formalisme de Rayleigh-Sommerfeld. Les prévisions théoriques seront confrontées aux résultats expérimentaux.

2 - Calcul de l'intensité observée dans un plan situé à D de l'interface

α) Rappels

On considère dans l'espace objet un point M de coordonnées $(\alpha,\beta,0)$ et dans l'espace "image" un point P de coordonnées (x,y,D) (figure 4).

r désigne la distance MP et D la distance entre les plans objet et "image". Soient $\Omega(\alpha,\beta)$, l'amplitude complexe de l'onde dans le plan $z = 0$ (plan objet) et $A(x,y,D)$, l'amplitude complexe du champ au point $P\{x,y,D\}$. L'amplitude diffractée résultante en D est égale à {1} :

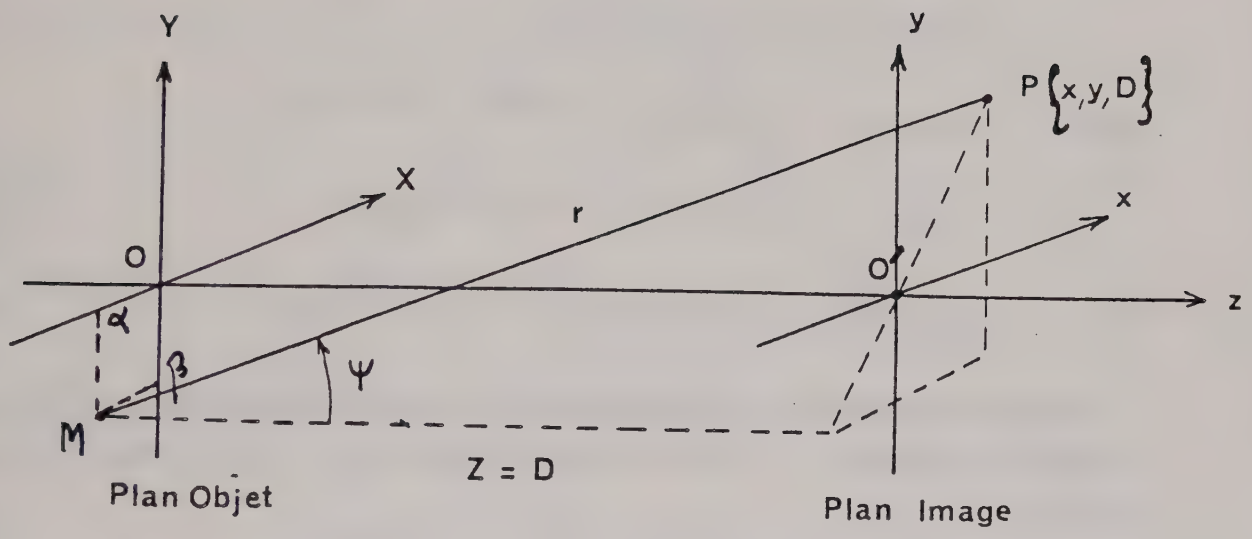
$$A(x,y,D) = \iint \Omega(\alpha,\beta)\ \cos\psi\ \frac{e^{jkr}}{j\lambda r}\ d\alpha d\beta \qquad \text{pour } r \gg \lambda \qquad (1)$$

avec $\cos\psi = \frac{D}{r}$; $k = \frac{2\pi}{\lambda}$; $r = \sqrt{(x-\alpha)^2+(y-\beta)^2+D^2}$; λ longueur d'onde dans l'air.

$A(x,y,D)$ est la superposition linéaire d'ondes sphériques divergentes, issues de sources ponctuelles de coordonnées $(\alpha,\beta,0)$, dont les amplitudes seraient modulées par la fonction spatiale $\frac{1}{j\lambda}\,\Omega(\alpha,\beta)\,d\alpha d\beta$. Ceci exprime tout simplement le principe de Huyghens-Fresnel.

$$A(x,y,D) = \int_{-\infty}^{+\infty}\!\!\iint \Omega(\alpha,\beta)\ \frac{\exp\left[jkD\left[1+\left(\frac{x-\alpha}{D}\right)^2+\left(\frac{y-\beta}{D}\right)^2\right]^{1/2}\right]}{j\lambda D\left[1+\left(\frac{x-\alpha}{D}\right)^2+\left(\frac{y-\beta}{D}\right)^2\right]^{1/2}}\ d\alpha d\beta \qquad (2)$$

../..



Diffraction de Rayleigh-Sommerfeld

Figure n° 4

On reconnaît que A(x,y,D) est un produit de convolution égal à :

$$A(x,y,D) = \Omega(\alpha,\beta) * P(\alpha,\beta,D) \tag{3}$$

avec $$P(\alpha,\beta,D) = \frac{\exp\left[jkD\left(1 + \frac{\alpha^2}{D^2} + \frac{\beta^2}{D^2}\right)^{1/2}\right]}{j\lambda D\left[\left(1 + \frac{\alpha^2}{D^2} + \frac{\beta^2}{D^2}\right)\right]^{1/2}} \tag{4}$$

$P(\alpha,\beta,D)$ est la réponse impulsionnelle du système.

En prenant la transformée de Fourier de l'équation (3), on obtient :

$$a(u,v,D) = \omega(u,v)\ p(u,v,D) \tag{5}$$

avec $$a(u,v,D) = \iint A(\alpha,\beta,D)\ e^{-2\pi j(u\alpha + v\beta)}\ d\alpha d\beta \tag{6}$$

$$\omega(u,v) = \iint \Omega(\alpha,\beta)\ e^{-2\pi j(u\alpha + v\beta)}\ d\alpha d\beta \tag{7}$$

et $$p(u,v,D) = \iint P(\alpha,\beta,D)\ e^{-2\pi j(u\alpha + \beta v)}\ d\alpha d\beta \tag{8}$$

Le calcul direct de la transformée de Fourier de la fonction P n'est pas évident. Cependant, il a été fait par GASKILL {2}. Le résultat a été trouvé égal à :

$$p(u,v,D) = \exp\left[jkD\{1 - \lambda^2(u^2 + v^2)\}^{1/2}\right] \tag{9}$$

La fonction p(u,v,D) caractérise la fonction de transfert du système associée à la réponse impulsionnelle $P(\alpha,\beta,D)$ en D.

β) Calcul de l'intensité observée dans un plan situé à la distance D de l'interface liquide-liquide

L'interface liquide-liquide sépare deux liquides d'indices de réfraction différents. En l'absence de perturbation extérieure, l'interface est plane et l'onde plane incidente dont l'angle d'incidence θ_0 est supérieur à l'angle limite, est totalement réfléchie. Toute l'énergie du faisceau incident se retrouve dans le faisceau réfléchi. En présence d'une perturbation périodique on observe à une distance D une énergie diffractée fonction du pas de la perturbation et de l'amplitude de la modulation (figure 5).

La modulation sinusoïdale du profil de l'interface liquide-liquide peut être représentée par la fonction :

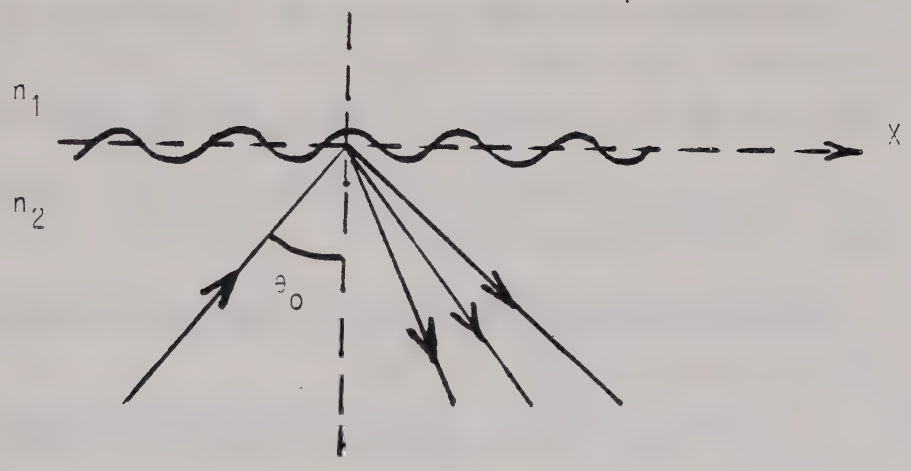
$$M = \bar{\xi}_{12} \sin \frac{2\pi x}{p} \tag{10}$$

../..

Figure 5

$\alpha_o = \sin\theta_o$ $\gamma_o = \cos\theta_o$ $\theta_o > 62°$

L'interface est plane. Elle se comporte comme un miroir plan.



$\theta_o > 62°$

L'interface est modulée sinusoïdalement. Elle se comporte comme une mire de phase à profil sinusoïdal. Elle diffracte la lumière incidente.

où $\bar{\xi}_{12}$ est l'amplitude de la modulation calculée au chapitre III.

Il s'agit d'un réseau de phase, indépendant de la coordonnée y dont l'amplitude complexe en incidence normale peut-être représentée par :

$$\Omega_o(x,y) = e^{j\phi(x,y)} = e^{\{2\pi/\lambda_2 \bar{\xi}_{12} \sin(\frac{2\pi}{p} x)\}} \qquad (11)$$

où λ_2 caractérise la longueur d'onde de la lumière dans le milieu 2 d'indice $n_2 (\lambda_2 = \frac{\lambda}{n_2})$; λ longueur d'onde dans le vide.

La fonction $\Omega_o(x,y)$ donnée par l'expression (11) est une fonction périodique. Son développement en série de Fourier {3} est :

$$\Omega_o(x,y) = J_o(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}) + \sum_{m=1}^{\infty} J_m(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}) \left[e^{-jm\frac{2\pi}{p} x} + (-1)^m e^{-jm\frac{2\pi x}{p}} \right] \qquad (12)$$

$$\Omega_o(x,y) = J_o(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}) + 2 \sum_{m=1}^{\infty} \{J_{2m}(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12})\} \cos(2m \frac{2\pi}{p} x)$$

$$+ 2j \sum_{m=1}^{\infty} \{J_{2m-1}(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12})\} \sin\left[(2m-1) \frac{2\pi x}{p}\right] \qquad (13)$$

où $J_m(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12})$ caractérise la fonction de Bessel d'ordre m.

On suppose que l'amplitude $\bar{\xi}_{12}$ de la modulation de l'interface liquide-liquide est suffisamment petite ($\bar{\xi}_{12}/\lambda_2 \ll 1$) pour ne retenir dans le développement en série de Fourier (13) que le premier terme m = 1.

On sait alors d'après le chapitre III, qu'il faut utiliser une expérience avec les conditions suivantes :

- un niveau d'entrée faible, lorsque la fréquence spatiale de la perturbation est petite (p > 1mm).

- un niveau d'entrée important lorsque la fréquence spatiale est grande (p < 1mm).

Dans ces conditions, nous avons vérifié que les mesures expérimentales étaient en bon accord avec les prévisions théoriques. Nous redeviendrons sur ce point plus loin.

$$\Omega_o(x,y) = J_o(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}) + 2j\, J_1(\frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}) \sin(\frac{2\pi x}{p}) \qquad (14)$$

../..

Soient α_o, γ_o les cosinus directeurs de l'onde incidente (figure 5). L'amplitude de l'onde dans le plan z = 0 est :

$$\Omega(x,y) = \Omega_o(x,y)\ C^{-j\frac{2\pi}{\lambda_2}(\alpha_o x)} \tag{15}$$

Dans ces conditions, l'expression (5) s'écrit :

$$a(u,v,D) = \left[\omega(u,v) * \delta(u - \frac{\alpha_o}{\lambda_2})\ \delta(v)\right] p(u,v,D) \tag{16}$$

On pose $s = \frac{2\pi}{\lambda_2}\overline{\xi}_{12}$. La transformée de Fourier de $\Omega(x,y,D)$, compte-tenu des équations (14) et (15) est :

$$\omega(u,v) = J_o(s)\ \delta(u)\ \delta(v) + J_1(s)\left[\delta(u - \frac{1}{p}) - \delta(u + \frac{1}{p})\right]\delta(v) \tag{17}$$

$\delta(u \pm \frac{1}{p})$ étant les pics de Dirac centrés en $\pm \frac{1}{p}$.

L'expression (16) devient, en posant $u_o = \frac{\alpha_o}{\lambda_2}$:

$$\begin{aligned} a(u,v,D) = {} & J_o(s)\ p(u,o,D)\ \delta(u - u_o, v) + J_1(s)\ \{p(u_o + \tfrac{1}{p}, o, D) \\ & \delta(u - u_o - \tfrac{1}{p}, v) - p(u_o - \tfrac{1}{p}, o, D)\ \delta(u - u_o + \tfrac{1}{p}, v)\} \end{aligned} \tag{18}$$

En tenant compte du résultat (9), on obtient les relations suivantes :

$$p(u_o,0,D) = \exp\left[jkD\left(1 - \lambda_2^2 u_o^2\right)^{1/2}\right] = \exp(jkD\gamma_o) = \exp j\psi_o \tag{19}$$

$$p(u_o + \frac{1}{p},0,D) = \exp\left[jkD\left(1 - \lambda_2^2(u_o + \frac{1}{p})^2\right)^{1/2}\right] = \exp j\psi(\frac{1}{p}) \tag{20}$$

$$p(u_o - \frac{1}{p},0,D) = \exp\left[jkD\left(1 - \lambda_2^2(u_o - \frac{1}{p})^2\right)^{1/2}\right] = \exp j\psi(-\frac{1}{p}) \tag{21}$$

En appliquant à l'expression (18) la transformée de Fourier inverse, on trouve :

$$\begin{aligned} A(x,y,D) = {} & \exp(j2\pi u_o x)\Big[J_o(s)\ \exp(jkD\gamma_o) \\ & + J_1(s)\left(\exp j\psi(-\tfrac{1}{p})\ e^{j2\pi x/P} - \exp j\psi(\tfrac{1}{p})\ e^{-j2\pi x/P}\right)\Big] \end{aligned} \tag{22}$$

En posant :

$$\phi = \frac{1}{2}\left[\psi(-\frac{1}{p}) - \psi(\frac{1}{p})\right] \tag{23}$$

../..

et $$\chi = \psi_o - \frac{1}{2}\left[\psi(-\frac{1}{p}) + \psi(\frac{1}{p})\right] \qquad (24)$$

l'expression (22) donne :

$$A(x,y,D)\ A^*(x,y,D) \cong J_o^2(s) + 4J_o(s)J_1(s)\ \sin\chi \sin(\frac{2\pi x}{p} + \phi) + 4J_1^2(s)\ \sin^2(\frac{2\pi}{p}x + \phi) \qquad (25)$$

$J_o^2(s)$ représente l'intensité du faisceau direct ;

$J_o(s)J_1(s)\ \sin\chi\ \sin(\frac{2\pi x}{p} + \phi)$ représente l'intensité de la fréquence fondamentale 1/P. On remarquera qu'elle dépend de D par l'intermédiaire de $\sin\chi$

$4J_1^2(s)\ \sin^2(\frac{2\pi x}{p} + \phi)$ représente l'intensité dela fréquence double.

J_1 est plus petit que J_o pour les petites valeurs de D.

γ Commentaires

L'expression (25) montre que la fréquence fondamentale $\nu = \frac{1}{p}$ est affectée d'un terme d'amplitude égal à $4\ J_o(s)\ J_1(s)\ \sin\chi$ qui dépend de la distance D du plan d'observation à l'interface. Ce facteur s'annule pour les valeurs de D qui vérifient l'équation $\sin\chi = 0$. Compte tenu de la relation (24), on obtient la position des plans pour lesquels l'amplitude de la fréquence fondamentale s'annule :

$$\sin\chi = 0 \quad \text{pour} \quad \chi = n\pi \quad \text{avec} \quad n = 0,1,2,...$$

soit pour

$$kD_n\gamma_o - \frac{1}{2}\ kD_n\left[\left[1 - \lambda_2^2(u_o - \frac{1}{p})^2\right]^{1/2} + \left[1 - \lambda_2^2(u_o + \frac{1}{p})^2\right]^{1/2}\right] = n\pi :$$

$$D_n = \frac{n\lambda_2}{\left(\gamma_o^2 - \frac{\lambda_2^2}{p^2} - 2\alpha_o\ \frac{\lambda_2}{p}\right)^{1/2} + \left(\gamma_o^2 - \frac{\lambda_2^2}{p^2} + 2\alpha_o\ \frac{\lambda_2}{p}\right)^{1/2} - 2\gamma_o} \qquad (26)$$

La position des plans est repérée, le long du rayon réfléchi, par la distance $\overline{D}_n$:

$$\overline{D}_n = \frac{D_n}{\gamma_o} \qquad (27)$$

C'est cette distance que nous mesurons expérimentalement.

3) Facteur de modulation de "l'image" d'une mire à profil sinusoïdal

La modulation de la mire est égale à :

$$\frac{4J_1(s)\ \sin\chi}{J_o(s)} \qquad (28)$$

avec l'hypothèse que $(\frac{J_1}{J_0})^2 << \frac{J_1}{J_0}$ pour tenir compte de l'approximation du calcul. Ceci entraine que l'argument $s = \frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}$ des fonctions de Bessel doit être tel que :

$$s < 0,5$$

ce qui donne, pour $\bar{\xi}_{12}$, la valeur maximale de 800 Å environ à ne pas dépasser.

Dans ces conditions, on est sûr que l'on se place dans les hypothèses suivantes :

a) l'amplitude $\bar{\xi}_{12}$ est bien inférieure à l'épaisseur h_1 de la couche supérieure. On se trouve dans les conditions du calcul du chapitre III.

b) La déformation de l'interface liquide-liquide est sinusoïdale.

c) On ne tient compte que de la fondamentale et non des harmoniques du moiré.

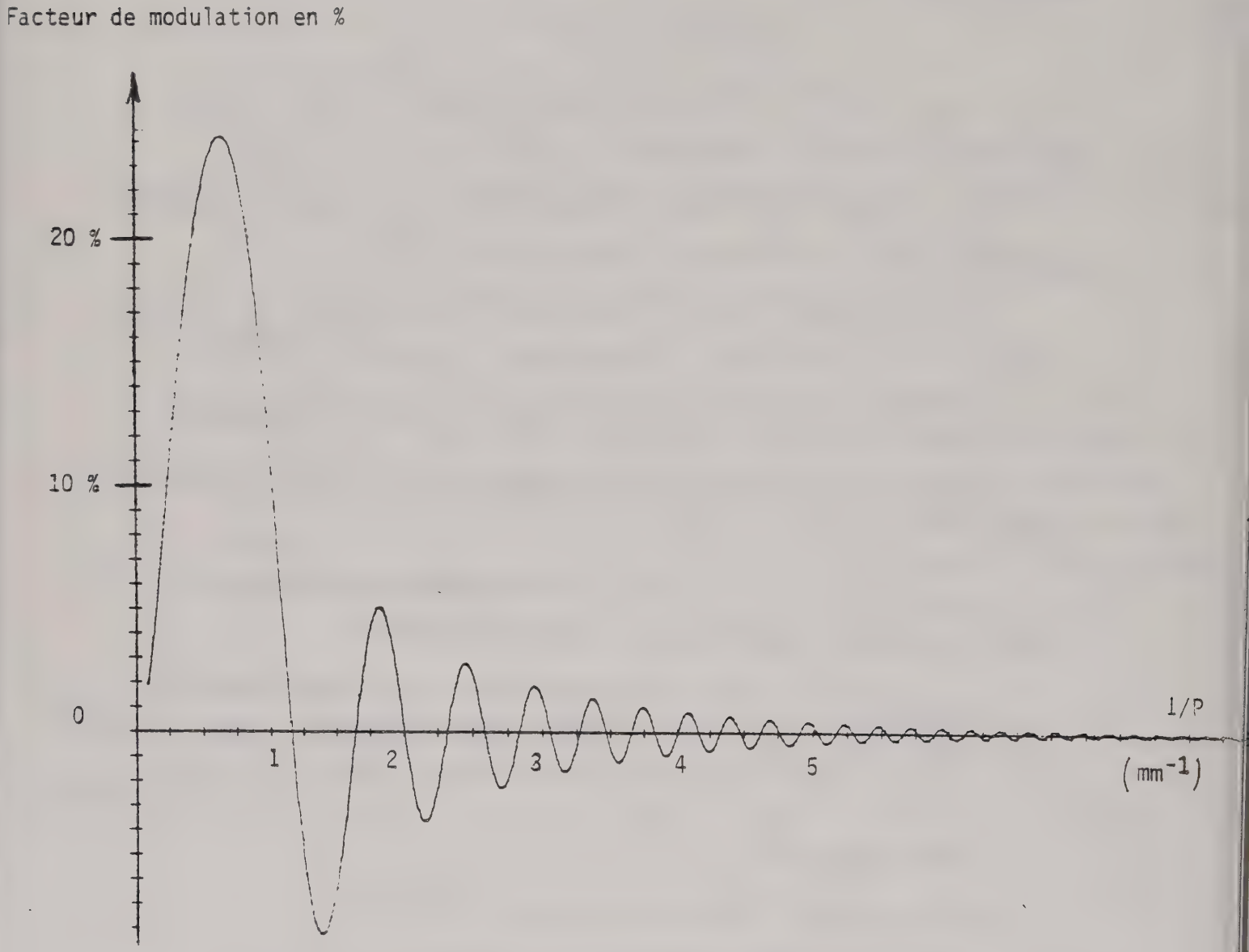
La modulation de l'image de la mire est affectée du facteur sin χ. Elle dépendra donc de la distance D de l'écran d'observation.

* Considérons un plan d'observation donné : certaines fréquences spatiales contenues dans l'objet n'apparaitront pas. Ainsi, par exemple pour une distance D = 20 cm, les fréquences spatiales suivantes : 1,2 mm^{-1} ; 1,7 mm^{-1} ; 2 mm^{-1} ; 2,3 mm^{-1} ; 2,6 mm^{-1} ; ont une modulation nulle (figure 6).

* Si on déplace l'écran d'observation, certaines fréquences réapparaissent au détriment d'autres qui disparaissent. Ainsi par exemple, pour D = 30 cm la fréquence spatiale 2 mm^{-1} a une modulation de 5 % (figure 7) alors que pour D = 20 cm elle était nulle.

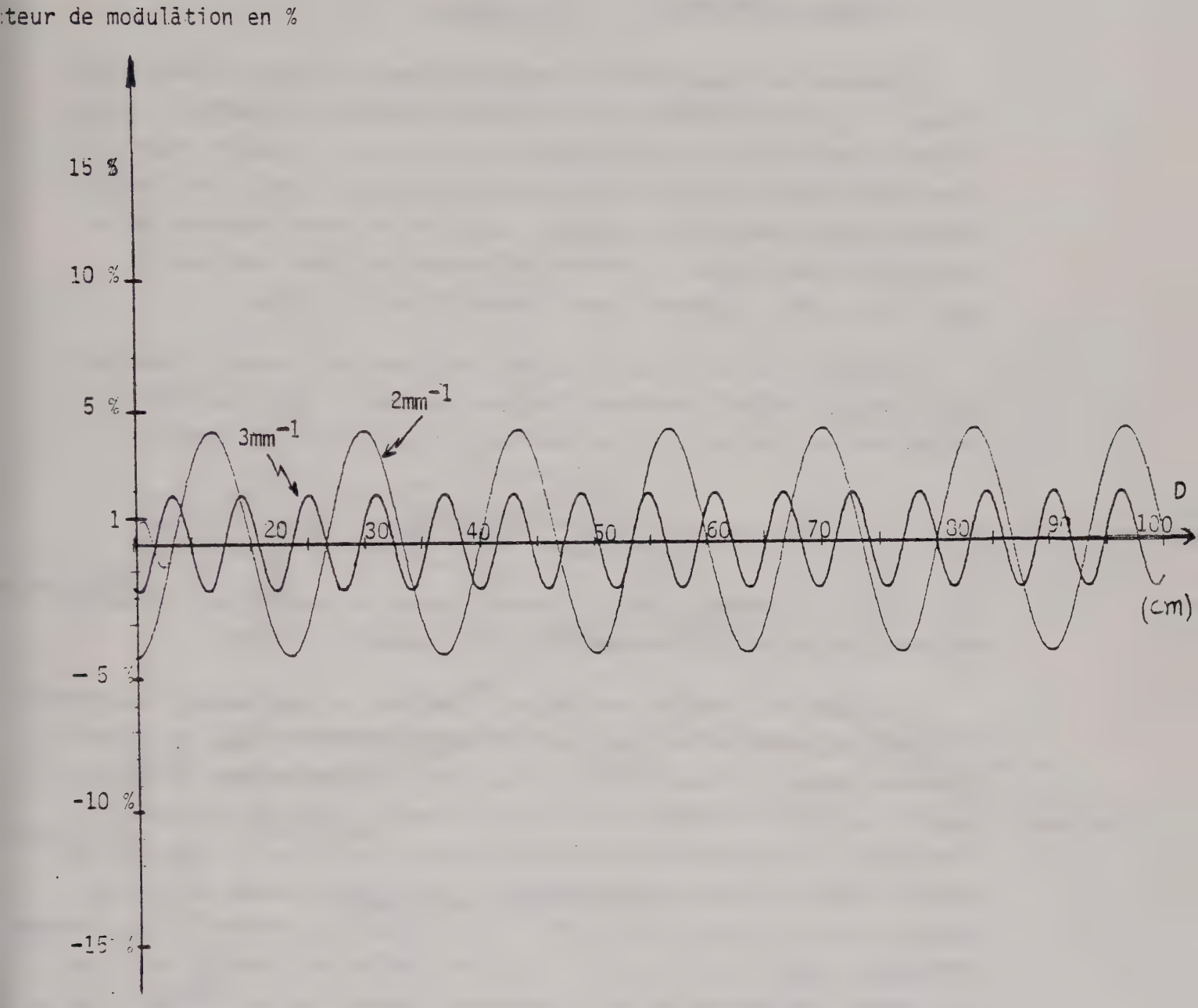
* La modulation de l'image de la mire décroît lorsque la fréquence spatiale augmente. Elle est inférieure à 2 % pour des fréquences spatiales supérieures à 3 mm^{-1}. Il ne sera donc pas possible (si $\bar{\xi}_{12} < 0,1$ µm) d'observer par diffraction de Fresnel une fréquence spatiale supérieure à 3 mm^{-1}

Figure 6



Facteur de modulation de l'image d'un réseau de phase sinusoïdale observée par diffraction de Fresnel à 20 cm avec l'hypothèse que seuls les ordres J ± 1 existent. Epaisseur de la couche supérieure $h_1 = 0{,}1$ µm
Amplitude de la modulation $\overline{\xi}_{12} < 0{,}1$ µm

Figure 7



Facteur de modulation pour différents pas p en fonction de la distance D du plan d'observation (développement limité aux fonctions de Bessel d'ordre 1). Epaisseur de la couche supérieure h_1 = 0,1 µm. Amplitude de la modulation de l'interface $\overline{\xi}_{12}$ < 0,1 µm.

IV - RESULTATS EXPERIMENTAUX

a) Montage Expérimental

Le schéma de l'expérience est représenté par la figure 8. On projette l'image d'un objet périodique sur la couche sensible. L'interface liquide-liquide se module alors et se comporte vis-à-vis de la lumière issue d'un laser He-Ne comme une mire de phase avec un pas égal à celui de l'objet et une amplitude de modulation fonction du pas et du niveau d'entrée de la perturbation. On analyse la lumière diffractée par cette mire sur un écran situé après le prisme à une distance D de l'interface.

L'objet est un moiré constitué par deux mires de Foucault, dont les traits font un angle θ entre eux. On peut modifier le pas p du moiré en faisant varier l'angle θ. La transmittance de cet objet est égale à :

$$T(x) = \frac{1}{2}\left[1 + \frac{8}{\pi^2}\sum_{j=0}^{\infty}\left(\frac{\sin 2\pi(2j+1)\,x/p}{(2j+1)^2}\right)\right]$$

T(x) n'est pas sinusoïdal, mais la décroissance des harmoniques (figure 8) est assez rapide et, pratiquement seul le fondamental compte.

La source utilisée est une lampe à iode dont le rayonnement appartient en partie au proche infrarouge. Seul, ce dernier est absorbé, car si on intercale devant la lampe une cuve d'eau, le signal disparait. Il existe en effet une bande d'absorption (figure 9) vers 1,7 µm dans la couche supérieure. Le rayonnement visible de la source facilite les réglages, et comme le domaine spectral considéré est 1,7 µm, les optiques du montage peuvent être des objectifs en verre. Ils transmettent en effet le rayonnement infrarouge jusqu'à 2 µm ; celui-ci est très faible, mais encore suffisant pour donner une déformation de l'interface liquide-liquide. "L'image" de la mire est identique à l'objet si on l'observe dans un plan parallèle à l'interface liquide-liquide. Dans un plan perpendiculaire au faisceau d'éclairage, elle est anamorphosée dans un rapport 1/2 ($\cos\theta_o \cong \frac{1}{2}$). On a néanmoins choisi pour plan d'observation un plan perpendiculaire au faisceau de lecture, afin de simplifier le montage.

b) Mesure de l'amplitude de la modulation par diffraction de Fraunhofer

A grande distance les ordres se séparent et on se trouve alors en diffraction de Fraunhofer. La réponse du système dépend du niveau d'entrée

Figure n° 8

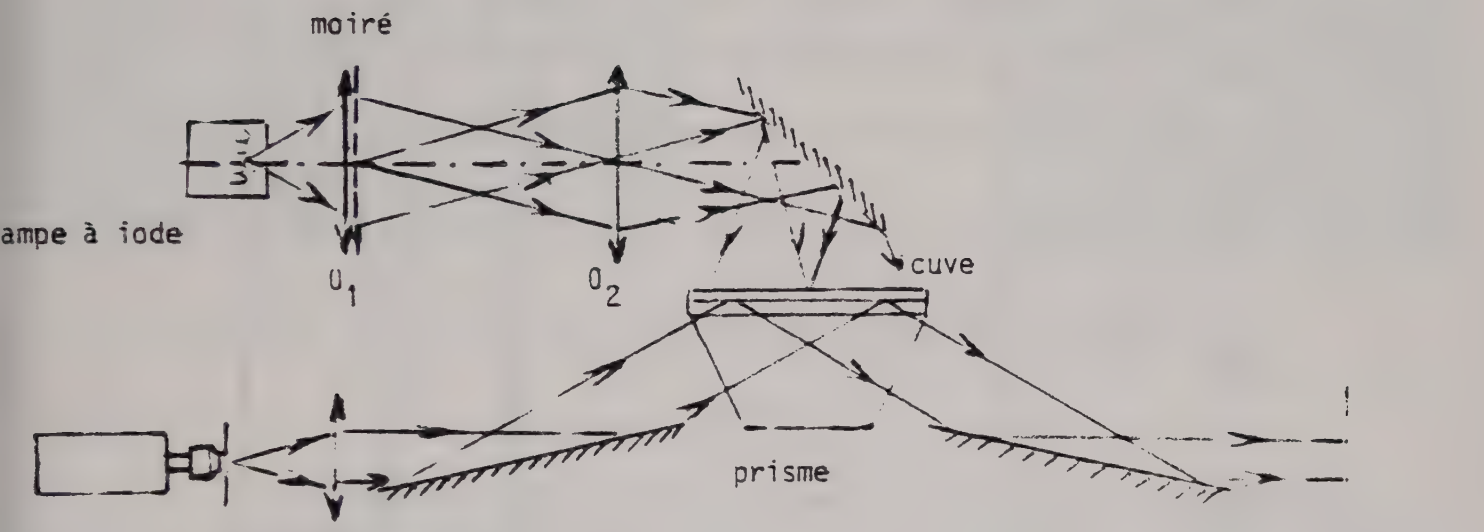


Schéma du montage expérimental

$$T(x) = \frac{1}{2}\left[1 + \frac{8}{\pi^2}\sum_{j=0}^{\infty}\frac{\sin\left[2\pi\,(2j+1)\,{}^{x}/_{p}\right]}{(2j+1)^2}\right]$$

Amplitude des harmoniques du moiré

fondamental	0,41
1er harmonique	0,045
2ième harmonique	0,016

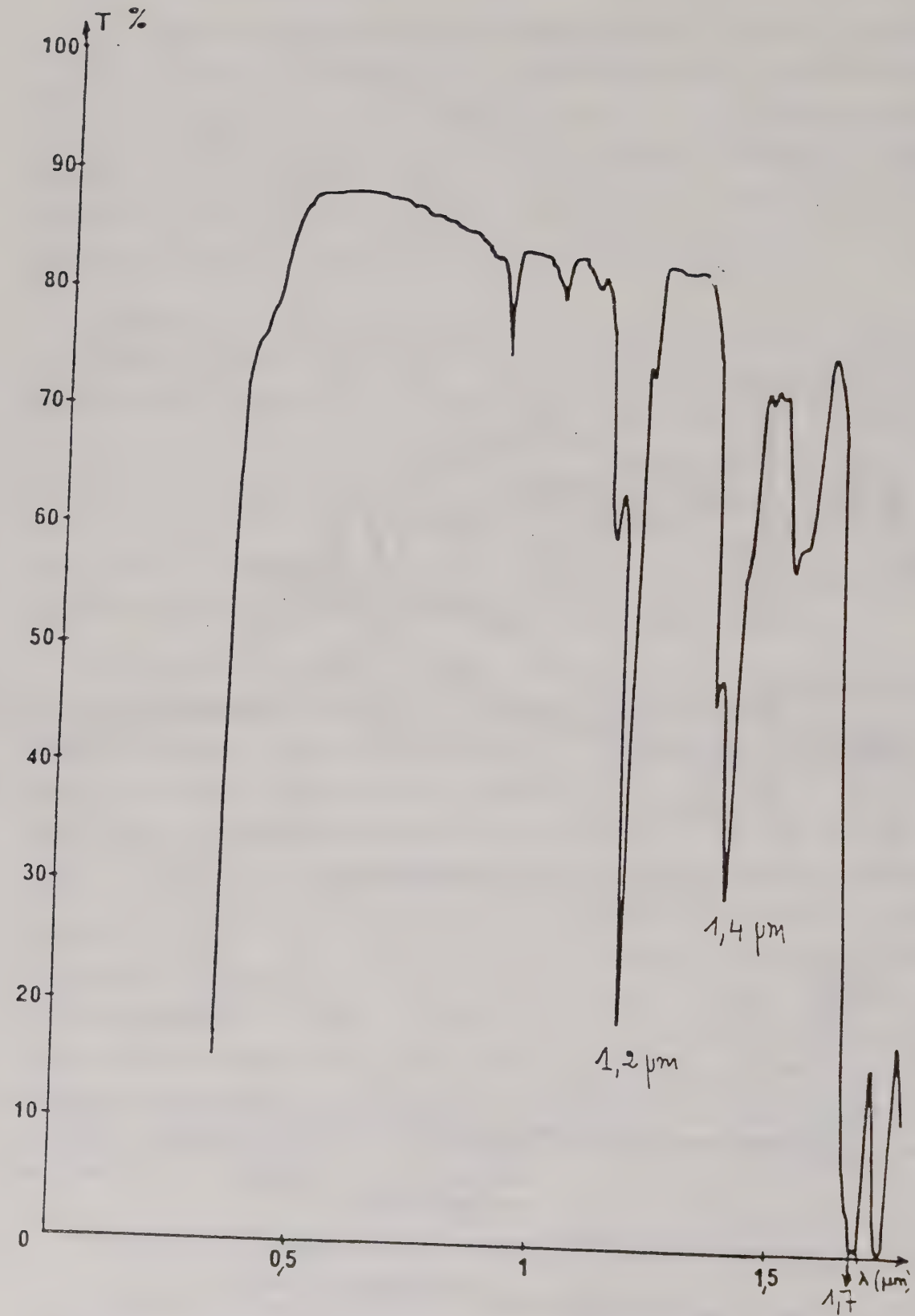


Figure n° 9

Spectre de transmission du mélange binaire sous une épaisseur de 1mm

et de la fréquence spatiale de la perturbation. On a fixé ici le niveau d'entrée et modifié le pas de la mire. On observe (figure 10) que pour certaines fréquences spatiales, l'intensité diffractée dans certains ordres s'annule :

- L'extinction de l'ordre zéro apparaît pour :

$$J_0(s) = 0 \qquad \text{pour} \qquad s = 2,405 \ \{3\}$$

avec $s = \frac{2\pi}{\lambda_2} \bar{\xi}_{12}$ et $\lambda_2 = \frac{\lambda}{n_2} = \frac{0,6328}{1,633}$

on trouve : $\bar{\xi}_{12} = 0,1484$ µm

La photo n° 4 de la figure 10 montre l'extinction de l'ordre zéro de la fonction de Bessel. Elle a été obtenue pour un pas p = 1,82 mm de la mire.

- L'extinction des ordres plus ou moins un apparaît pour :

$$J_0(s) = 0 \qquad \text{pour} \qquad s = 3,83 \ \{3\}$$

ce qui correspond à une amplitude de la mire de phase égale à :

$$\bar{\xi}_{12} = 0,2363 \text{ µm}$$

La photo n° 5 de la figure 10 montre l'extinction de la fréquence fondamentale obtenue avec un pas p = 2,10 de la mire.

De la même façon, à fréquence spatiale donnée, en augmentant le niveau d'entrée de la perturbation thermique, l'accroissement de s permet d'annuler l'intensité diffractée dans les différents ordres. Ceci n'a pas été fait, car nous ne disposions pas d'un niveau d'entrée suffisant, l'intensité dans le proche infrarouge de la lampe utilisée étant très faible.

Pour éteindre le fond continu, $J_0(s) = 0$, il est nécessaire que la modulation de l'interface liquide-liquide soit suffisamment grande. En effet, la figure 10-4 montre que dans ce cas là, il faut obtenir l'apparition des harmoniques d'ordres ± 3 dans le spectre de la mire de phase. Par conséquent l'apparition des harmoniques d'ordre ± 2 (figure 10-3) et, à fortiori, celle du fondamental (figure 10-2) s'effectuent pour des modulations de l'interface liquide-liquide très faibles bien inférieures à 0,15 µm.

../..

10-1

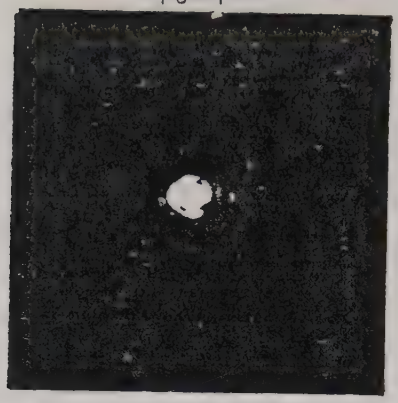
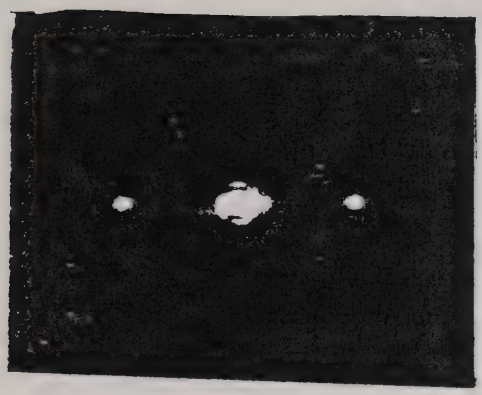


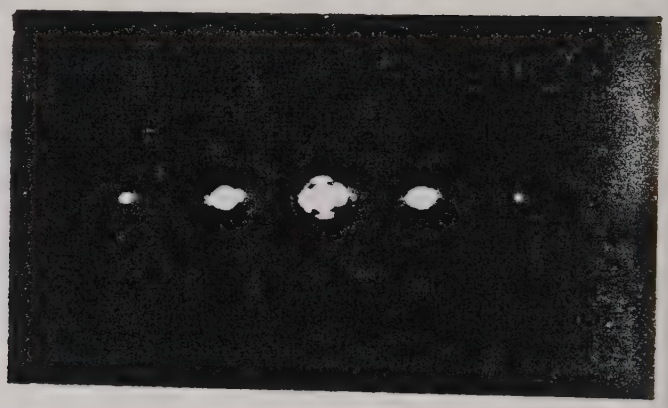
image de la source ponctuelle
à 10 mètres de l'interface

10-2



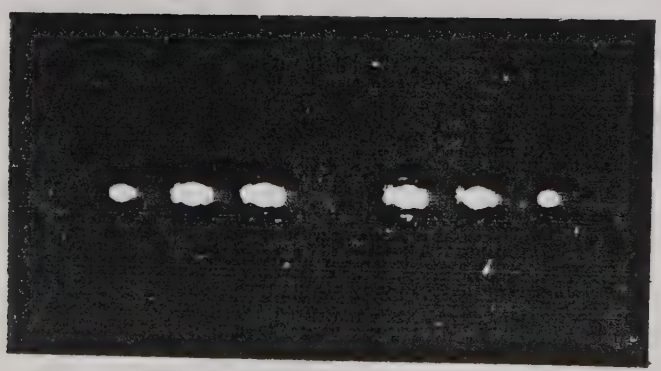
p = 0,95 mm
Apparition des ordres ± 1

10-3



p = 1,33 mm
Apparition de la 1ère harmonique

10-4



p = 1,82 mm
$J_0(Z) = 0$

Disparition du fond continu
Apparition du 2ième harmonique

10-5

p = 2,10 mm
$J_{\pm 1}(Z) = 0$

Disparition du fondamental
Réapparition du fond continu

Figure 10
Observation de la lumière diffractée à l'infini par l'interface liquide-liquide en fonction de sa modulation.

L'épaisseur de la couche supérieure étant de l'ordre de 0,1 mm, le dispositif expérimental utilisé satisfait aux conditions du calcul précédent : $\overline{\xi}_{12} \ll h_1$.

c) Observation de "l'image" de la modulation par diffraction de Fresnel

Lorsque l'on déplace un écran le long du faisceau de lumière réfléchie par la mire de phase près de l'interface (5 cm < D <100 cm), on observe une "image" du moiré dont l'aspect dépend pour un niveau d'entrée fixe :

- de la position de l'écran par rapport à l'interface liquide-liquide,
- du pas de la mire de phase.

Nous allons décrire visuellement son aspect en fonction de ces deux paramètres.

* A quelques centimètres de l'interface liquide-liquide, le contraste de l'image est faible. Il augmente progressivement lorsque le plan s'écarte de l'interface.

* Lorsque le pas de la mire est assez grand, c'est-à-dire pour :

$$h_2 > p > h_1$$

Avec $h_2 \cong$ quelques mm et $h_1 < 0{,}2$ mm, il existe une position pour laquelle l'image est nette. Elle est alors constituée de lignes lumineuses fines sur fond clair. Un exemple est donné par la figure 11-a. A grande distance, les lignes lumineuses s'élargissent et se bordent de lignes sombres. L'image n'est plus alors représentative de la mire de phase. Il y a apparition des harmoniques d'ordres supérieurs. (figure 11-b).

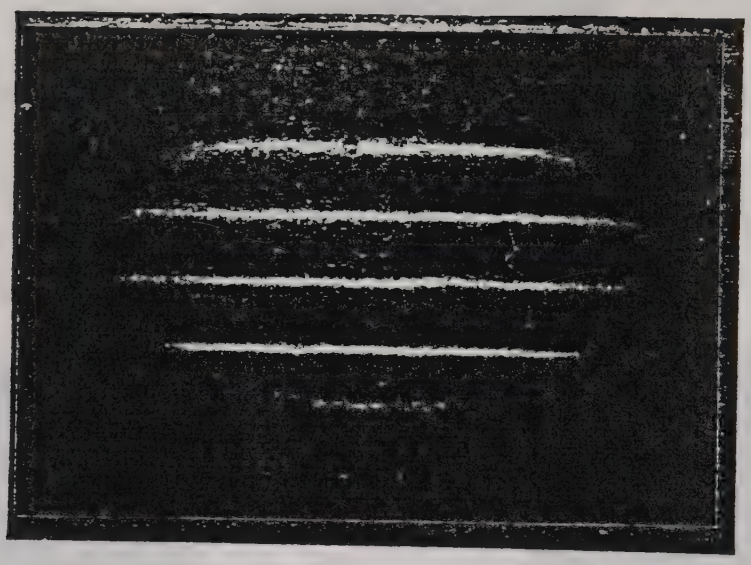
* Lorsque le pas de la mire devient petit, c'est-à-dire pour :

$$p < h_1 < h_2$$

avec $h_1 < 0{,}2$ mm et $h_2 \cong$ quelques mm.
Il n'existe pas de position du plan d'observation pour laquelle on observe des lignes lumineuses fines sur fond clair. Quelle que soit la position du plan d'observation, la structure de l'image du moiré est

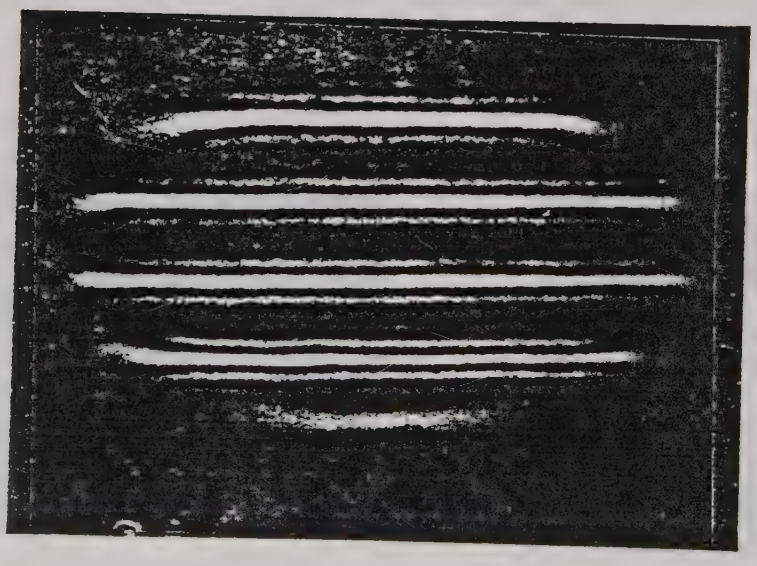
../..

11 - a



Aspect de l'image à 40cm du prisme pour p = 2mm
(niveau d'entrée faible)

11 - b



Aspect de l'image du même objet à 100cm du prisme
Apparition des harmoniques du premier ordre
(niveau d'entrée faible)

Figure 11

conforme à l'objet (figure 12). On n'observe pas l'effet des harmoniques d'ordres supérieurs comme dans le cas précédent. Le contraste est faible parce que la réponse de l'interface est faible, mais également parce que la modulation devient tellement petite, qu'en dessous d'un pas p inférieur à 0,3 mm environ, il n'est plus possible d'observer une image de la mire par ombroscopie.

d) Existence d'un plan de focalisation

Une fente d'analyse de largeur égale à 0,15 mm est placée parallèlement aux traits de l'image du moiré. Elle est déplacée parallèlement à elle-même, à vitesse uniforme. Le flux qui traverse la fente est focalisé sur une photo-diode, dont le signal électrique est mesuré par un amplificateur à démodulation synchrone

On choisit un plan d'observation à D = 40 cm (D est la distance du plan à l'interface liquide-liquide). On effectue une série d'enregistrements pour diverses fréquences spatiales $\nu = \frac{1}{p}$ de l'objet. Pour chaque enregistrement, on mesure la modulation de l'éclairement de l'image définie par :

$$\gamma = \frac{E_{max} - E_{min}}{E_{moyen}} = \frac{\Delta E}{E_{moyen}}$$

E_{moyen} est l'éclairement de l'image obtenue pour $\nu = 0$ (fond continu) (figure 13).

On porte sur un graphique γ en fonction de kh_1. Un exemple est donné par la figure 14. On constate que la courbe passe par un maximum. Etant donné la définition de γ, ce maximum correspond à une position du plan d'observation coïncidant avec le "plan de focalisation" pour cette fréquence spatiale. Pour des fréquences légèrement supérieures, le plan d'observation choisi est plus éloigné que le plan de focalisation ; il est, par contre, plus proche que ce plan pour des fréquences légèrement inférieures (voir courbe figure 15 - chapitre III).

. Calcul de l'amplitude $\overline{\xi}_{12}$ de la modulation correspondant à cette distance de focalisation. La courbure est égale à :

$$\mathcal{C} = k^2 \overline{\xi}_{12} = \frac{1}{2f} = \frac{1}{2D}$$

../..

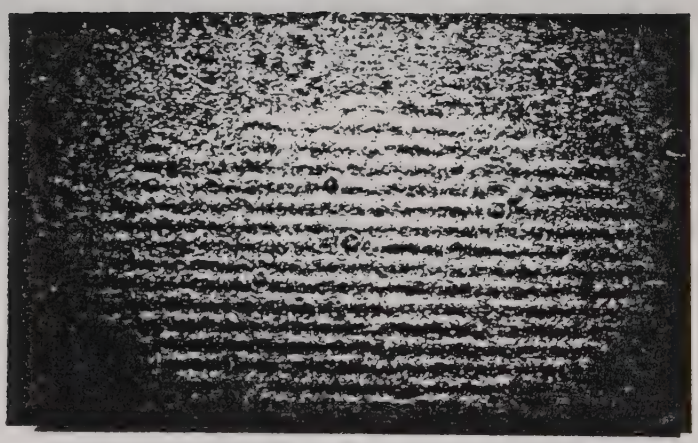
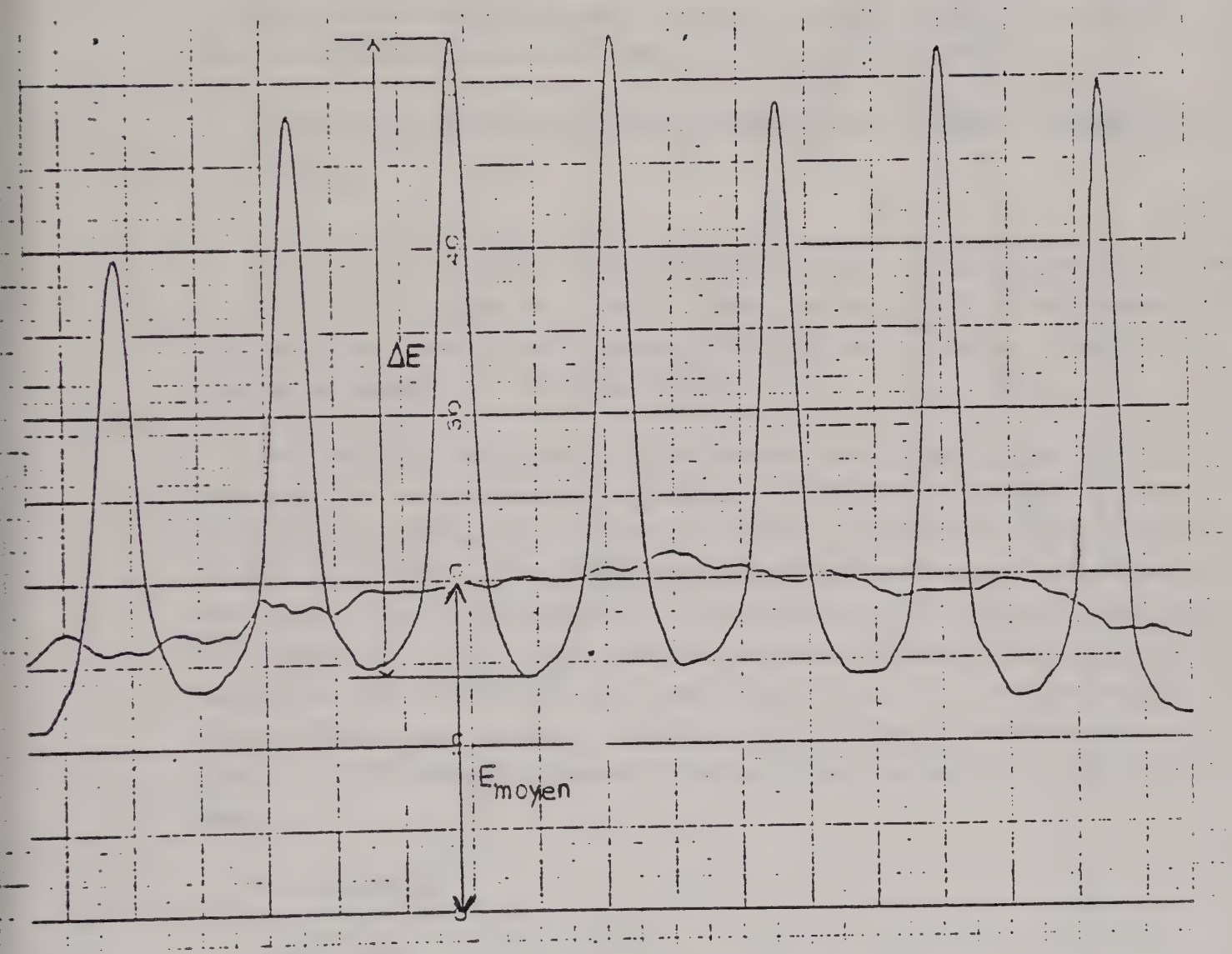


Image de l'objet périodique observé par diffraction de FRESNEL à 100cm du prisme pour un pas p = 0,5mm la modulation dela mire est trop faible pour pouvoir observer les harmoniques d'ordres supérieurs.

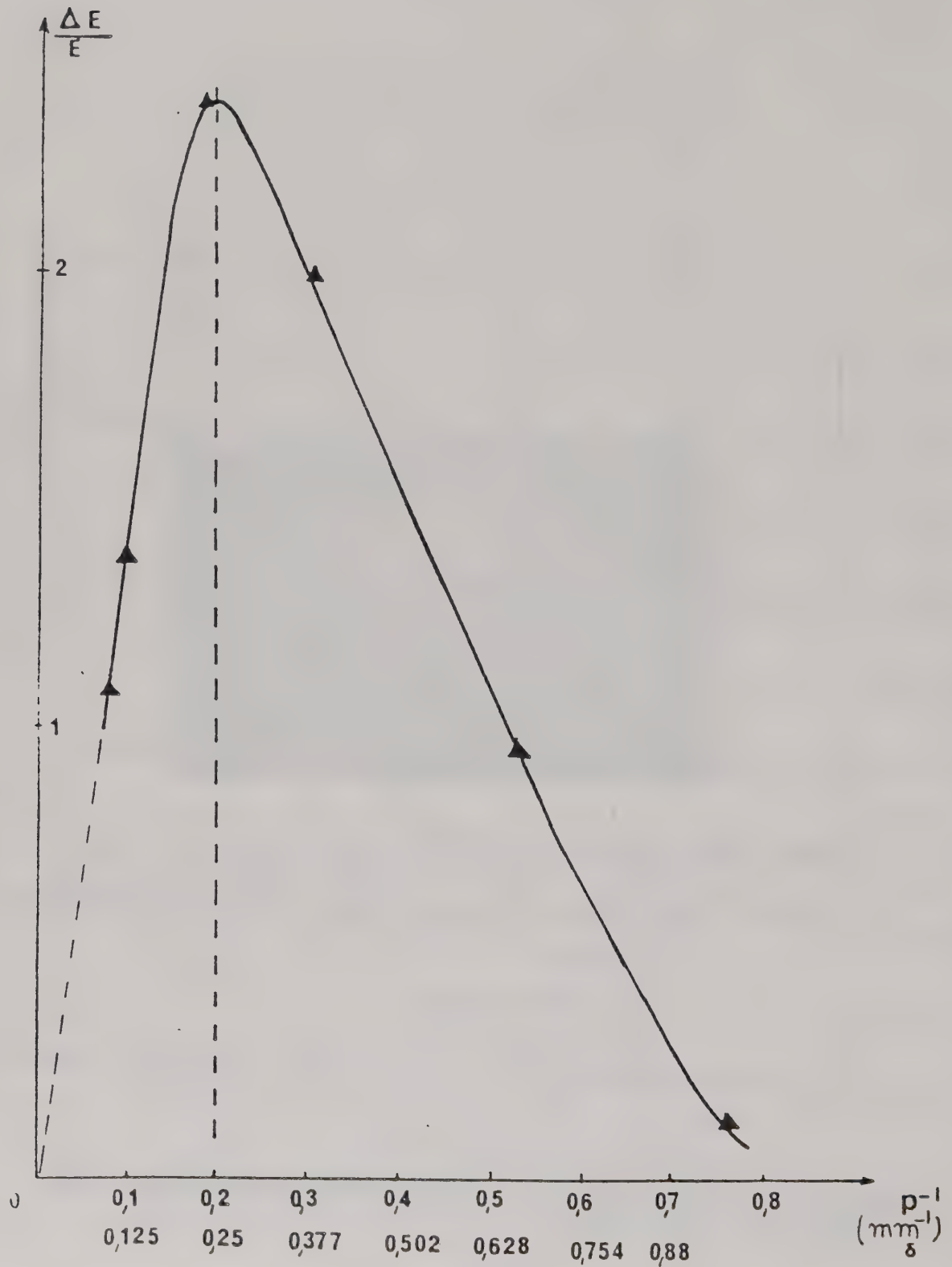
Figure n° 12



Enregistrement photoélectrique de l'image dans un plan situé à 40cm du prisme pour un pas de 2mm

$$\gamma = \frac{\Delta E}{E_{moyen}}$$

Figure 13



Evolution du contraste de l'image d'un objet périodique dans un plan donné en fonction de l'objet $\left[T = 20°C ; h_1 \sim 0,2mm\right]$

Figure n° 14

d'où $\overline{\xi}_{12} = \frac{1}{2k^2 f}$

$f = D = 400$ mm $\quad p = 1,2$ mm $\quad k = 0,628$ mm^{-1} $\quad \overline{\xi}_{12} \cong 0,9$ µm

On s'aperçoit que l'amplitude est importante, bien que $\overline{\xi}_{12} \ll h_1 = 200$ µm. Il faut une forte modulation de l'interface liquide-liquide pour espérer obtenir une focalisation de la lumière à 40 cm de l'interface.

e) Positions des plans à facteur de modulation minimum de l'image de la mire

Lorsque l'on déplace l'écran d'observation le long du faisceau de lecture, on constate que l'image de la mire disparaît et réapparait successivement dans des plans situés à des distances multiples de l'interface liquide-liquide. Un exemple est donné par la figure 15.

Les résultats théoriques et expérimentaux sont comparés. La figure 16 représente la position des plans à modulation minimum en fonction du pas p de la mire. Le tableau de la figure 17 compare les positions calculées pour un angle d'incidence θ_o de l'onde monochromatique du faisceau de lecture et pour le cas n = 1. On constate qu'il existe un bon accord entre l'expérience et la théorie à la précision des mesures données. La position de ces plans particuliers est indépendante de l'amplitude de modulation de l'interface liquide-liquide dans la mesure où celle-ci est faible, c'est-à-dire bien inférieure. Elle dépend seulement du pas de la mire et de l'angle d'incidence θ_o.

f) Conclusion

L'expérience décrite a montré qu'il n'y a pas une relation linéaire entre la répartition de l'amplitude de l'objet de phase - l'interface liquide-liquide modulée - et la répartition de l'amplitude de l'image ombroscopique. Cependant, si on considère que l'objet de phase a une amplitude de modulation faible ($\overline{\xi}_{12} < 0,1$ µm) il existe alors une relation linéaire entre l'intensité observée dans le plan et la phase de l'objet, quelque soit la distance D

../..

Existence d'un plan à constraste minimum pour un pas p du réseau

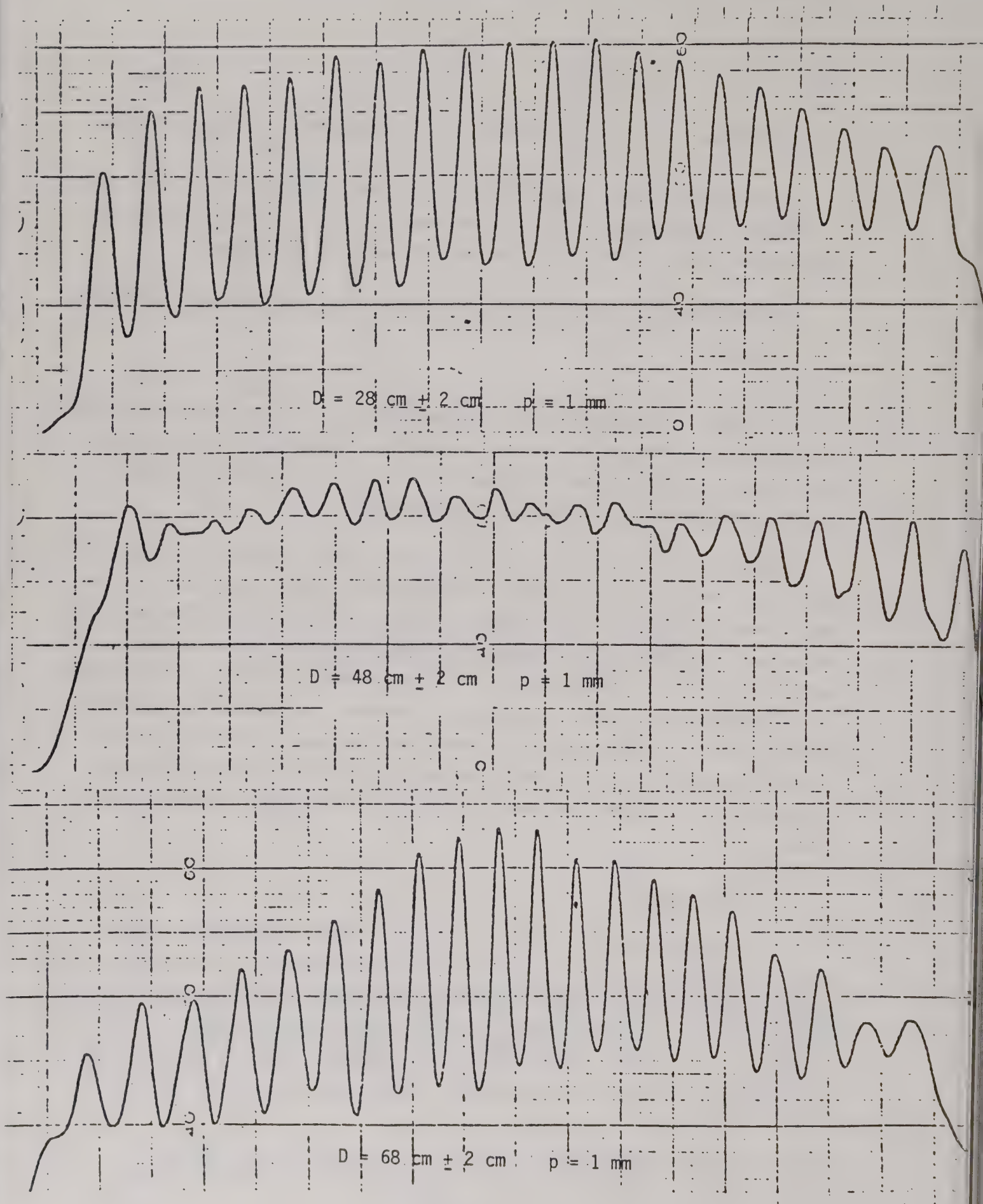
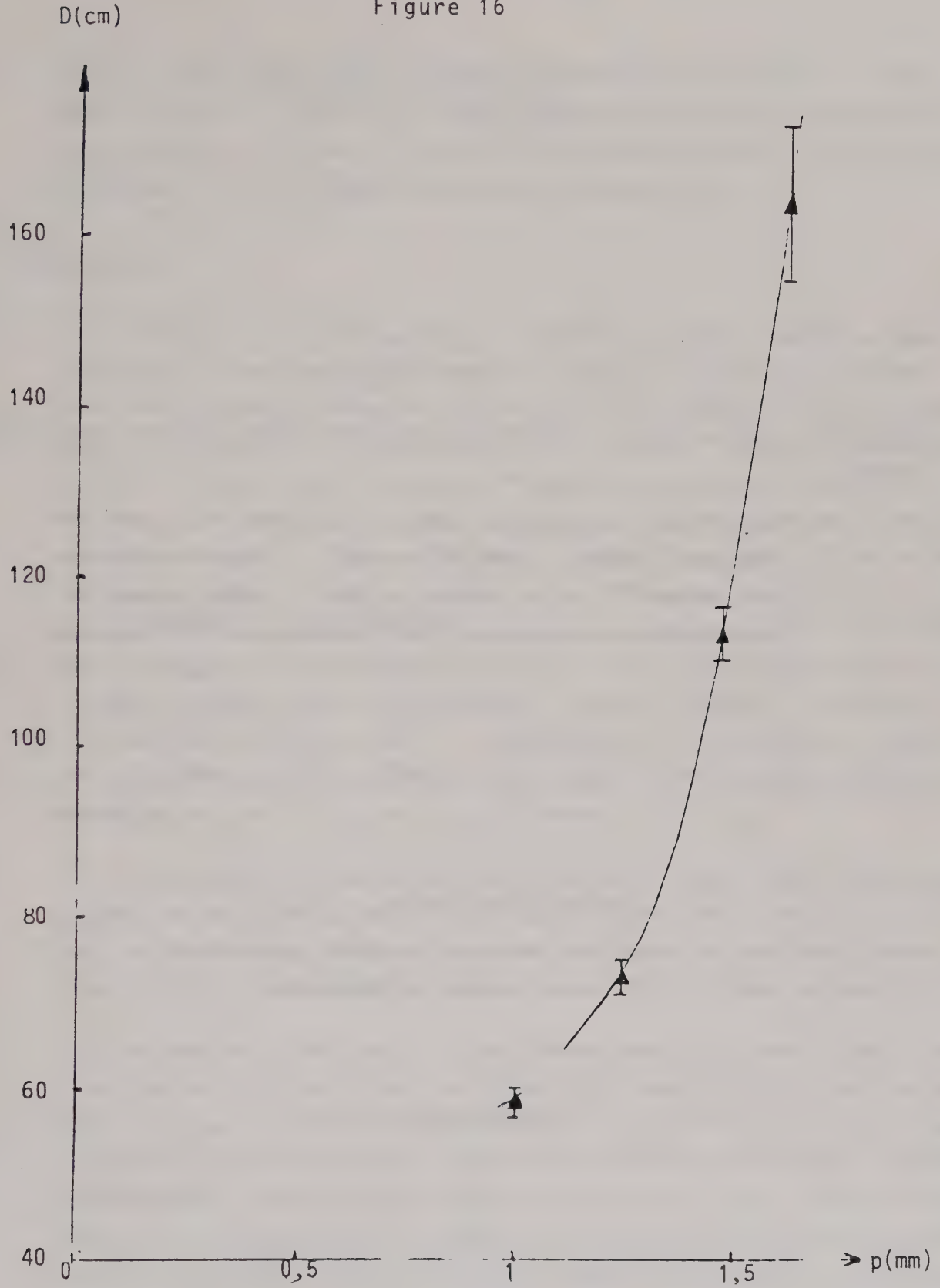


Figure n° 15

Positions des plans à contraste minimum
en fonction du pas p de la mire.
Figure 16



▲ points expérimentaux. La courbe tracée a été calculée d'après la formule 26.

Angle d'incidence θ_0 = 61° 22'

Position des plans à contraste minimum pour un pas de la mire donné :

Pas de la mire en mm	Position des plans en cm (calculs)	Position des plans en cm (mesures)
1	50	48 ± 2
1	100	104 ± 4
1	150	148 ± 5

Angle d'incidencê θ_o = 62° 38'

L'accord entre les résultats calculés et mesurés sont satisfaisants.

Figure n° 17

choisie. C'est le cas pour les images observées avec des pas $p < 1$ mm, même pour des $D > 1$ mètre. Si l'amplitude de modulation de l'objet de phase est forte ($\bar{\varepsilon}_{12} > 0{,}1$ µm) il n'y a pas linéarité. Cependant, on peut s'en rapprocher si la distance D est faible (quelques ūns).

V - CONCLUSION

L'analyse de la déformation de l'interface liquide-liquide par une perturbation thermique spatialement périodique, par diffraction Fresnel en lumière cohérente, a montré que pour un faible niveau d'entrée, la modulation de l'interface est importante pour les basses fréquences spatiales ($< 1\text{mm}^{-1}$) et faible pour les hautes fréquences spatiales ($> 3\text{mm}^{-1}$). Ce résultat était prévu par la théorie (chapitre III). Pour une amplitude de modulation faible $\bar{\varepsilon}_{12} < 0{,}1$ µm "l'image d'ombre" d'un objet périodique est conforme à l'objet. C'est le cas des hautes fréquences spatiales ($p < 1$ mm) quelque soit la distance D choisie pour le plan d'observation. Par contre, pour les basses fréquences spatiales ($p > 1$ mm), si D est trop grand ($\sim$ 1m) "l'image d'ombre" n'est plus conforme à l'objet. On observe l'apparition d'harmoniques d'ordres élevés. Il n'existe pas alors une relation linéaire entre l'amplitude de l'objet de phase et celle de l'image ombroscopique de cet objet.

Les mesures expérimentales nous ont permis de nous rendre compte de la grandeur et de l'étendue des déformations : elles sont larges et peu profondes donc les pentes sont faibles. Elles sont de l'ordre de quelques minutes d'angle. Il est donc normal de rejeter la strioscopie comme méthode optique.

Une méthode interférentielle par dédoublement de l'onde, capable de visualiser un objet de phase à variation lente pourrait être plus favorable dans ce genre de problème. Cependant l'objet de phase est un milieu instable. Il est sensible aux vibrations mécaniques extérieures. En outre, l'interface est légèrement courbe. Eclairée sous un angle de 60° (afin, d'être en réflexion totale), le faisceau réfléchi présente un astignatisme important (plusieurs cm). La courbure de l'interface change lorsque le système est perturbé par un rayonnement absorbé. Elle met un certain temps à reprendre sa forme d'origine, lorsque le rayonnement est coupé. Il n'est donc pas possible de le corriger. Cette instabilité de l'interface explique aussi l'insuccès de l'interférométrie comme méthode de visualisation. Par contre, l'ombroscopie par réflexion permet

de visualiser les modulations de l'interface liquide-liquide avec une bonne sensibilité. En effet, cette méthode optique n'est pas affectée par l'instabilité mécanique de l'interface.

Avec une solution supérieure de l'ordre de 0,1 mm d'épaisseur, il n'a pas été possible de visualiser par ombroscopie une modulation de l'interface liquide-liquide au-delà de $3mm^{-1}$. Il aurait été souhaitable de travailler avec une solution supérieure de plus faible épaisseur. Mais, en dessous de 0,1 mm d'épaisseur l'interface liquide-liquide n'est plus plane et la visualisation d'une "image" devient impossible.

BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE V

1/ Introduction to Fourier Optics
J.W. Goodman Mc Graw-Hill
New-York 1968

2/ Linear Systems Fourier Transforms and Optics
Jack D. Gaskill
Wiley Interscience 1978

3/ Angot - Masson

CHAPITRE VI

Application de l'effet Marangoni à la conversion d'images infrarouges en images visibles

I - INTRODUCTION

Nous utilisons les propriétés amplificatrices du système diphasique pour visualiser des images infrarouges dans la bande spectrale comprise entre 8 µm et 14 µm. Cette bande spectrale correspond au rayonnement d'objets dont la température est comprise entre - 50°C et 100°C {1}. Il s'agit donc de restituer sous forme d'une image visible la distribution énergétique de l'objet observé.

Un objectif infrarouge forme l'image infrarouge de l'objet sur la surface libre du système diphasique (figure 1). L'absorption du rayonnement par le liquide supérieur transforme l'image infrarouge en une image thermique. Chaque point M' de la couche sensible recevant un rayonnement IR issu du point correspondant M de l'objet, va élever de $\delta T'$ en M' la température superficielle du système diphasique.

Comme nous l'avons expliqués au chapitre III, il apparaitra une modulation de l'interface liquide-liquide dont l'amplitude dépendra de l'échauffement $\delta T'$ du récepteur.

L'emploi de l'ombroscopie par réflexion totale a montré qu'il était possible de visualiser la modulation de l'interface liquide-liquide d'une manière simple. On observe alors sur un écran interceptant la lumière diffractée par l'interface liquide-liquide, une variation d'éclairement. Ces zones brillantes et sombres représentent l'image infrarouge par ombroscopie.

L'idée d'utiliser l'effet Marangoni amplifié par la modulation d'une interface liquide-liquide et de visualiser par ombroscopie les déformations, a donné lieu au dépôt d'un brevet (voir annexe II). La preuve de la faisabilité de ce nouveau transformateur d'image thermique a été faite en collaboration avec la SOPELEM. Nous décrirons dans ce chapitre, le prototype réalisé avec cette société, et nous présenterons les images thermiques obtenues en utilisant les mélanges suivants :

- un mélange binaire
- un mélange ternaire

Les caractéristiques physico-chimiques de ces deux mélanges ont été décrites dans le chapitre IV.

../..

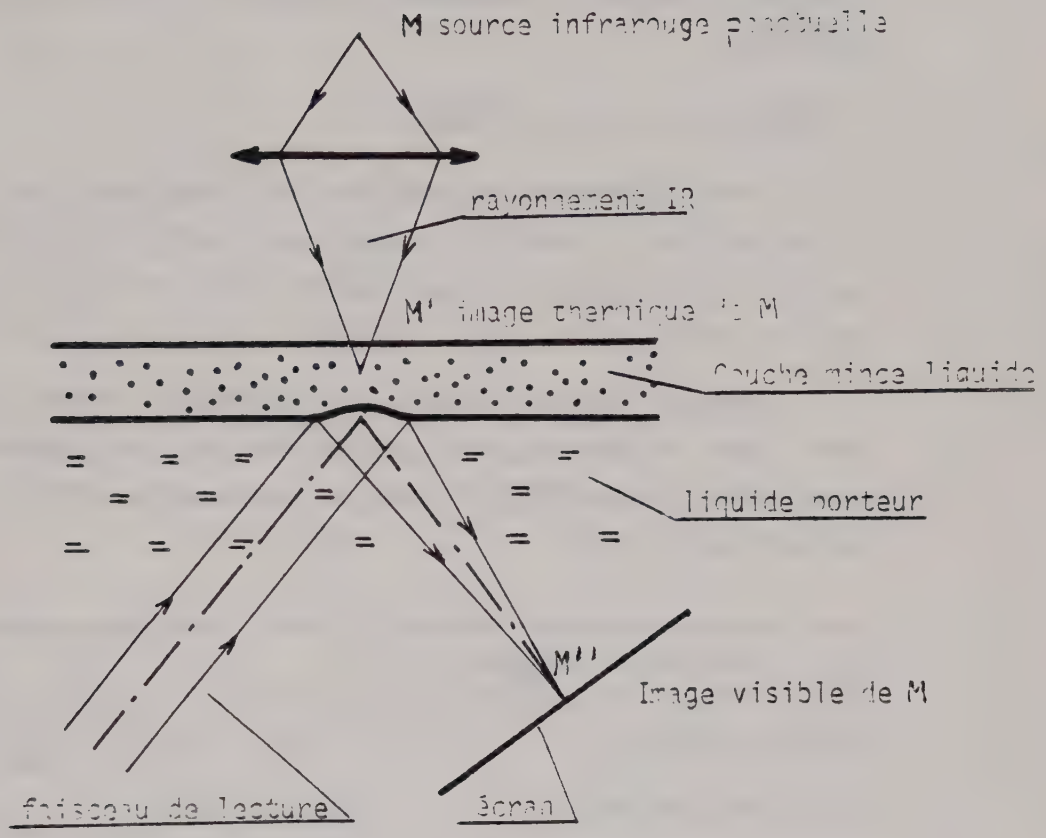


FIGURE 1

Principe de la détection par ombroscopie d'une source ponctuelle M plus chaude que l'environnement M" apparaît comme une tache brillante sur un fond clair et uniforme sur l'ecran.
'e cas inverse est celui d'une source ponctuelle plus froide que l'environnement. La déformation de l'interface est alors convexe et l'image M" apparaît comme une tâche sombre sur un fond clair et uniforme sur l'écran.

Enfin, nous décrirons une expérience d'imagerie thermique par strioscopie. Nous comparerons l'image obtenue à celles données par le prototype.

II - CALCUL D'UN ORDRE DE GRANDEUR DE L'ECHAUFFEMENT DE LA SURFACE LIBRE DU SYSTEME

1. Absorption IR du récepteur

L'enregistrement des spectres des constituants et de chaque phase a été réalisé à l'aide d'un spectrophotomètre Perkin Elmer 297. Tous les spectres correspondent à des couches d'épaisseur (7,6 ± 0,2) µm. Les mesures ont été faites entre 910 cm^{-1} (10,99 µ) et 1250 cm^{-1} (8,00 µm).

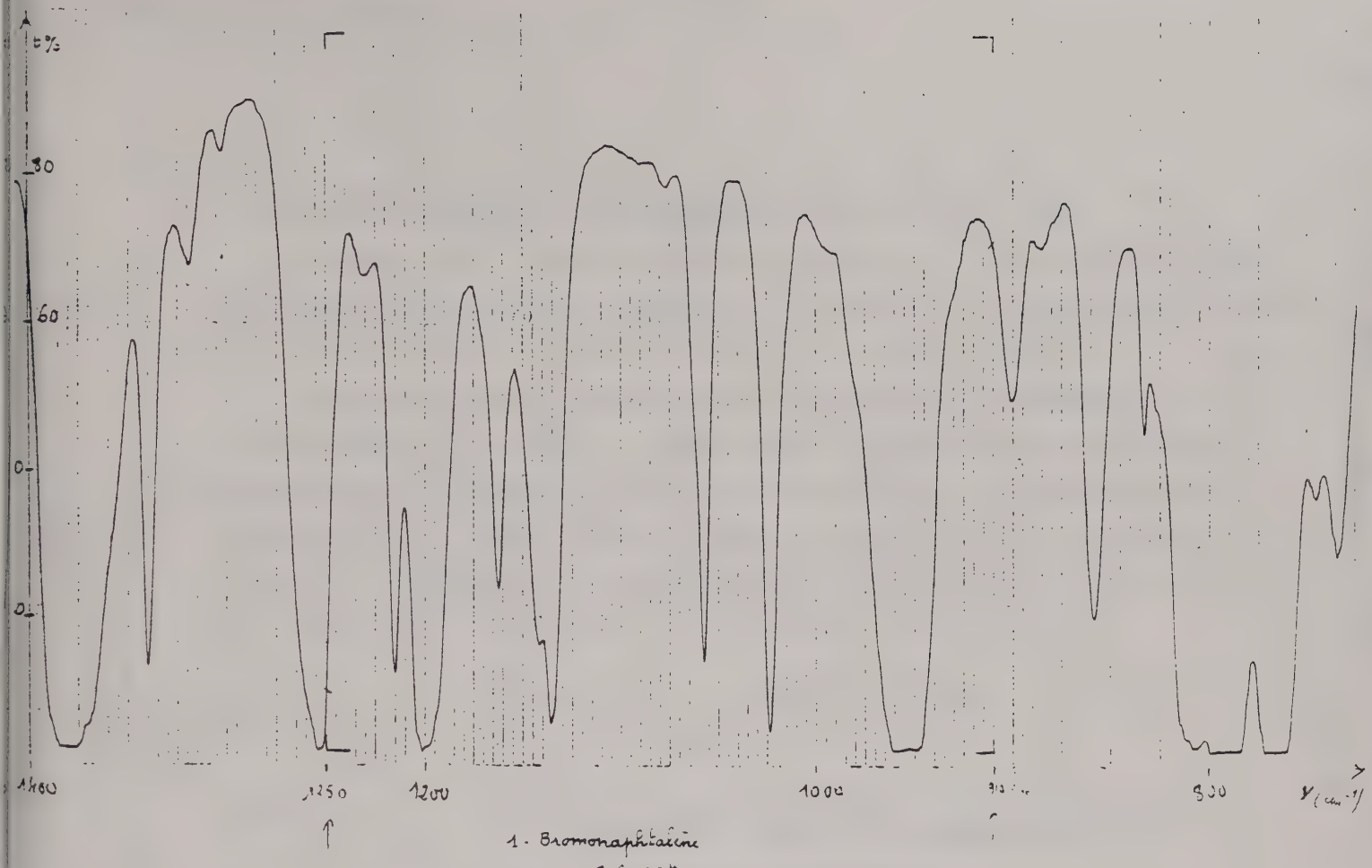
La mesure des aires, avec un planimètre, permet d'évaluer la transmission t des couches étudiées dans ce domaine de longueur d'onde et le coefficient d'absorption k pour un faisceau parallèle et normal, aux pertes par réflexion près.

Nature de la couche	t	μm^{-1}
huile SI 200/3	0,5 ± 0,00	k_{oh} = 0,080 ± 0,001
1-bromonaphtalène	0,51 ± 0,01	k_{ob} = 0,089 ± 0,001
huile SI 200/3 saturé en 1- bromonaphtalène	0,56 ± 0,01	k_h = 0,076 ± 0,001
1-bromonaphtalène saturé en huile SI 200/3.	0,227 ± 0,002	k_b = 0,195 ± 0,001

Les enregistrements sont représentés par les figures 2 et 3. Pour une couche d'huile saturée en 1-bromonaphtalène, d'épaisseur e_h = 60µm, la valeur trouvée pour k_h donne pour transmission t_h la valeur Log $t_h = -k_h e_h$ soit t_h = 0,01.

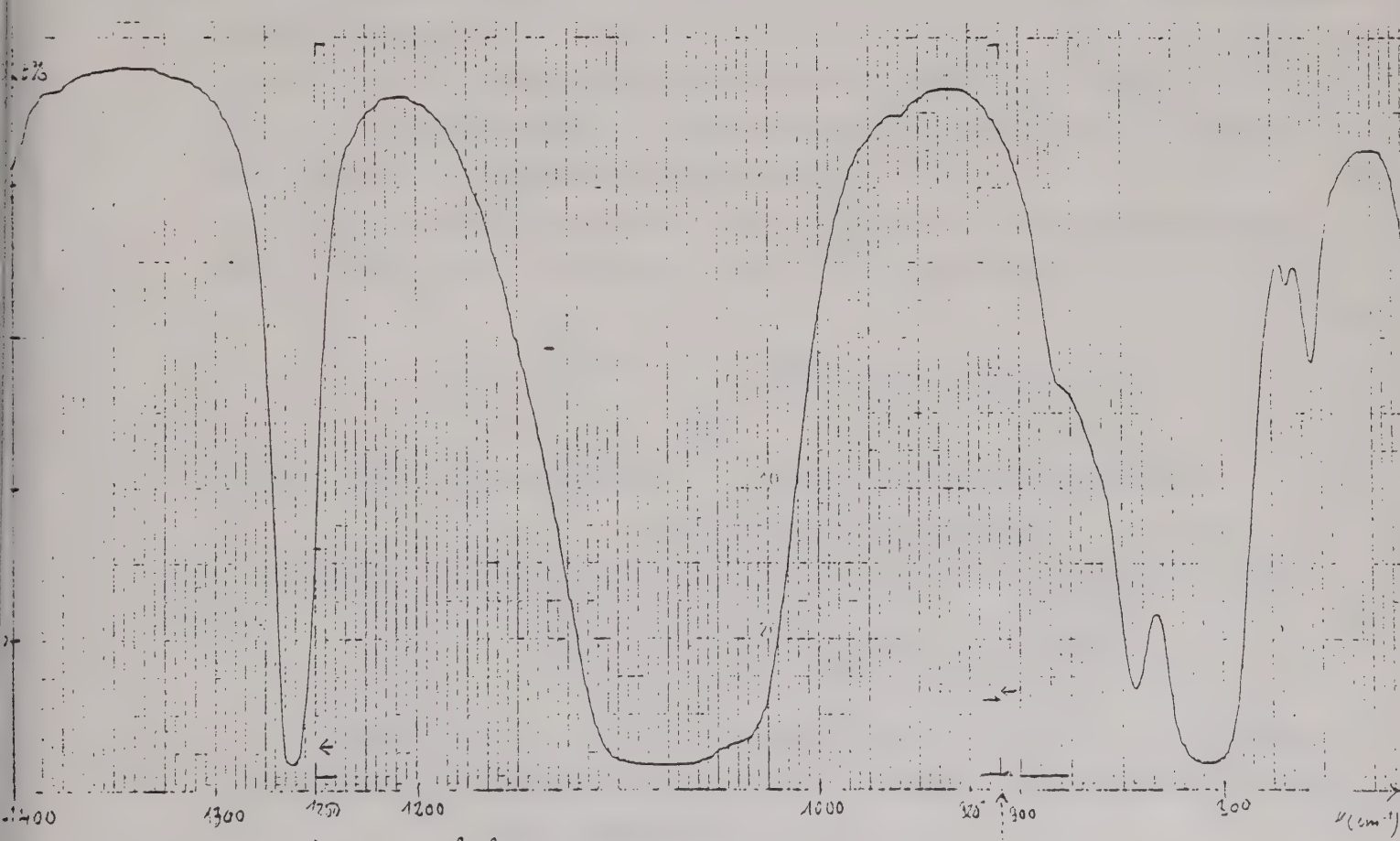
Il est donc raisonnable d'admettre que tout le rayonnement infrarouge est entièrement absorbé par la couche d'huile saturée et n'atteint pratiquement pas la couche inférieure de 1-bromonaphtalène saturée, si on irradie le système par dessus.

../..



1 - Bromonaphtalène
ε = 7,6 ± 0,2 μ

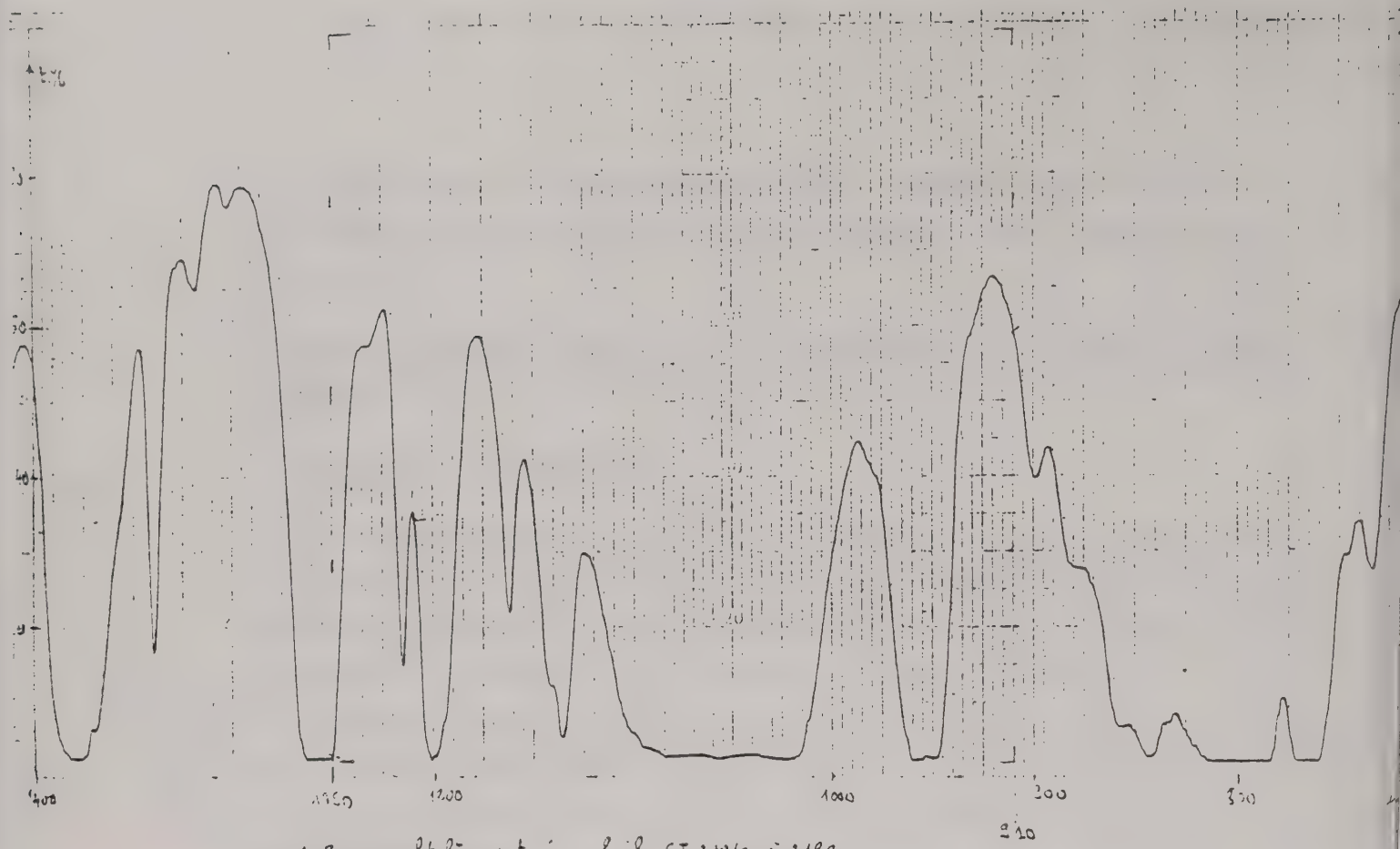
2 - a



huile SI 200/3
ε = 7,6 ± 0,2 μ

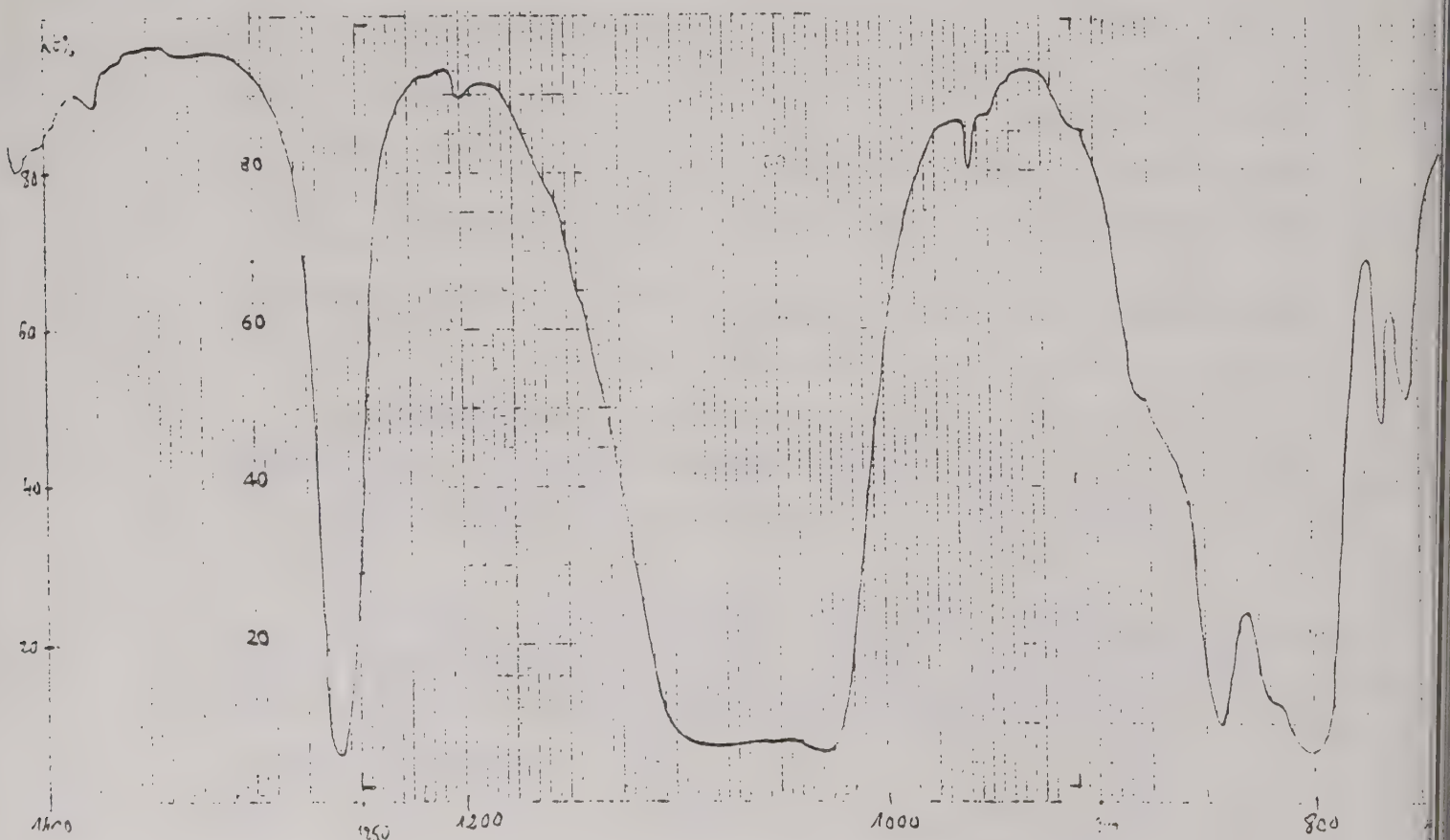
2 - b

FIGURE 2



1 - Bromonaphtalène saturé en huile SE 200/3 à 21°C

$e = 7,6 \pm 0,2\,\mu$ 3 - a



huile SE 200/3 saturée en 1 - bromonaphtalène à 19°C

$e = 7,6 \pm 0,2\,\mu$ 3 - b

FIGURE 3

2. Calcul de l'élévation de température de la surface libre

La théorie de l'imagerie thermique dans le cas d'un récepteur mince et étendue a été étudiée en détail par W.K. Weihe, C. Hilsum et W.R. Harding et d'autres [2]. Nous en donnerons ici le résultat essentiel.

On suppose que le récepteur est en équilibre de température avec l'objet observé. En outre, on suppose que l'image thermique n'est pas dégradée par les pertes de chaleur par convection et condution dans la couche sensible. Cette hypothèse n'est pas réalisée, mais elle permet d'obtenir facilement un ordre de grandeur de l'échauffement. Dans ces conditions, $\delta T'$ s'exprime par une expression simple égale à :

$$\delta T' = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \, a_1 \sin^2 u \, \frac{4\sigma \, \theta_o^3}{4\sigma \, \theta'^3} \, \delta T_o \qquad (1)$$

ε_1 et ε_2 sont les facteurs d'émissivité des deux faces opposées du récepteur mince (figure 4).
a_1 le facteur d'absorption côté rayonnement du récepteur.
u le demi-angle d'ouverture du cône contenant le rayonnement infrarouge dans l'espace image.
θ_o et θ' sont les températures moyennes de l'objet et du récepteur.
δT_o et $\delta T'$ sont les écarts de température sur l'objet et sur le récepteur par rapport à leur température moyenne θ_o et θ''.

L'énergie émise par un corps noir, par unité de surface et de temps, dans l'intervalle de longueurs d'onde $\lambda_1 - \lambda_2$ est égale à :

$$W_{\lambda_1}^{\lambda_2}(T) = \pi \int_{\lambda_2}^{\lambda_1} L_\lambda (T) d\lambda$$

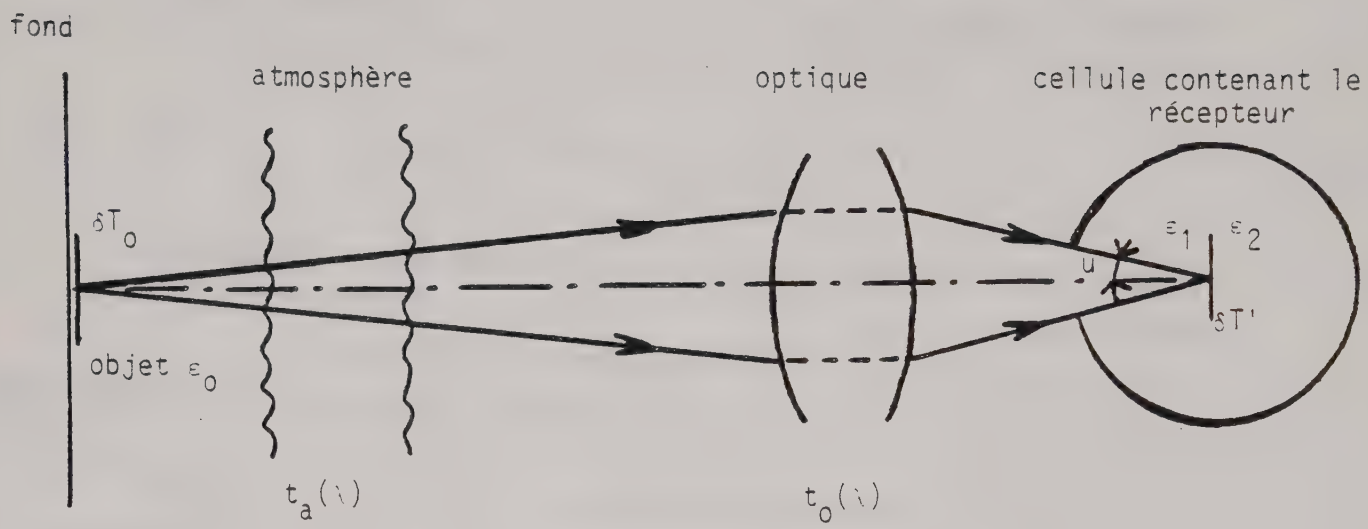
$L_\lambda(T)$ est la luminance spectrale du corps à la température absolue T.

Pour un corps noir à la température ambiante (300°K), environ 34 % de l'énergie totale seulement, est contenue dans l'intervalle 8 µm à 14 µm :

$$W_8^{14}(300°K) \cong 0{,}34\pi \int_0^\infty L_\lambda(T) d\lambda = 0{,}34 \, \sigma T^4$$

Les récepteurs d'images thermiques étendus sont sensibles aux différences de luminances présentes dans la scène observée. La différence entre un

../..



$$\delta T' = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \, a_1 \sin^2 u \varepsilon_o \, \frac{4\sigma \, \vartheta_o^{\,3}}{4\sigma \, \vartheta'^3} \, \delta T_o$$

$$T_{objet} = \vartheta_o + \delta T_o \qquad \text{avec} \qquad \delta T_o \ll \vartheta_o$$

$$T'_{récepteur} = \vartheta' + \delta T' \qquad \text{avec} \qquad \delta T' \ll \vartheta'$$

Figure 4

corps à la température T_o et le fond à la température T_f est égale à :

$$\Delta L \Big|_{\lambda_1}^{\lambda_2} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} t_A(\lambda) \left| L_\lambda(T_o) - L_\lambda(T_f) \right| d\lambda \qquad (3)$$

$t_A(\lambda)$ est la transparence atmosphérique spectrale à la longueur d'onde λ.

$$\Delta L \Big|_{\lambda_1}^{\lambda_2} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} t_A(\lambda) \frac{\delta L_\lambda}{\partial T} \Big|_{T_s} d\lambda \qquad (4)$$

un calcul simple montre que :

$$4\sigma\theta_o^{\,3} = \pi \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \frac{\delta L_\lambda}{\partial T} \Big|_{\theta_o} d\lambda \qquad (5)$$

L'élévation locale de température $\delta T'$ sur la couche sensible est donc égale à :

$$\delta T' = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \, a_1(\sin^2 u) \, \phi(\lambda_1, \lambda_2, \theta_o) \, \delta T_o \qquad (6)$$

avec

$$\phi(\lambda_1, \lambda_2, \theta_o) = \frac{\pi}{4\sigma\theta_o^{\,3}} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} t_A(\lambda) \frac{\delta L_\lambda}{\partial T} \Big|_{\theta_o} d\lambda$$

L'équation (6) gouverne le transfert d'énergie entre l'objet et l'image. On peut caractériser l'efficacité du transfert d'énergie entre l'objet et l'image par le facteur F :

$$F = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \, a_1(\sin^2 u) \, \phi$$

Pour obtenir une grande sensibilité, c'est-à-dire un échauffement local $\delta T'$ sur le récepteur important, pour un écart δT_o de température sur la surface de l'objet, de température moyenne θ_o , avec $\theta_o \ll \delta T_o$, il faut que les éléments $E = \frac{\varepsilon_I}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}$, u et ϕ soient grands.

ϕ est une quantité calculée (W.K. Weihe) dépendant fortement de la teneur en eau de l'atmosphère traversée par le rayonnement. Par exemple, pour la région 8 - 14 µm, correspondant à une "fenêtre atmosphérique" pour le récepteur d'image infrarouge, ϕ est approximativement égal à $\frac{1}{2}$ si la

pression en vapeur d'eau est 0,7 mm de mercure, et $\frac{1}{3}$ pour 17 mm de mercure. On a donc intérêt à travailler en atmosphère sèche.

La grandeur $\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}$ représente le facteur de dissymétrie du récepteur. Il caractérise l'aptitude de la couche à absorber de préférence le rayonnemen arrivant sur l'une de ses faces.

Le système diphasique est épais. Il est constitué par la superposition de deux fluides placés sur un prisme de verre épais. Il absorbe le rayonnement infrarouge dans une mince pellicule de la solution supérieure. Le rest du système, c'est-à-dire, la solution inférieure et le prisme ne s'échauffe pas. Il n'y a donc pas de perte d'énergie par rayonnement, les pertes ne pouvant se faire que par convection ou conduction. On peut poser $\varepsilon_2 = 0$ et l'expression (6) devient égale à :

$$\delta T' = a_1(\sin^2 u)\ \phi(\lambda_1, \lambda_2, \theta_o)\ \delta T_o \qquad (7)$$

Prenons un instrument fonctionnant suivant les conditions suivantes :

- une optique ouverte à f/1, c'est-à-dire $\sin^2 u = 0,25$
- la transmission de l'énergie par rayonnement entre 8 et 14 µm est complète. Alors $t_A = 1$.
- une couche sensible dissymétrique sans couplage par rayonnement avec l'enceinte E = 1.
- un facteur d'absorption infrarouge le meilleur possible $a_1 = 1$.
- une atmosphère sèche $\phi = \frac{1}{2}$

Alors une variation δT_o de 1°C sur la surface d'un corps noir devrait donner sur la surface libre du système diphasique une élévation de température $\delta T'$ de l'ordre de 0,1°C.

En réalité, si on tient compte des pertes d'énergie (voir annexe I) par convection et conduction dans la solution supérieure, le résultat doit être divisé d'un facteur dix. Ainsi en tenant compte des pertes, à un gradient de 1°C sur l'objet, il correspondrait un gradient de $\frac{1}{100}$ °C sur la surface libre du système diphasique.

III - DESCRIPTION DE L'APPAREIL

Le schéma de l'appareil est donné à la figure 5.

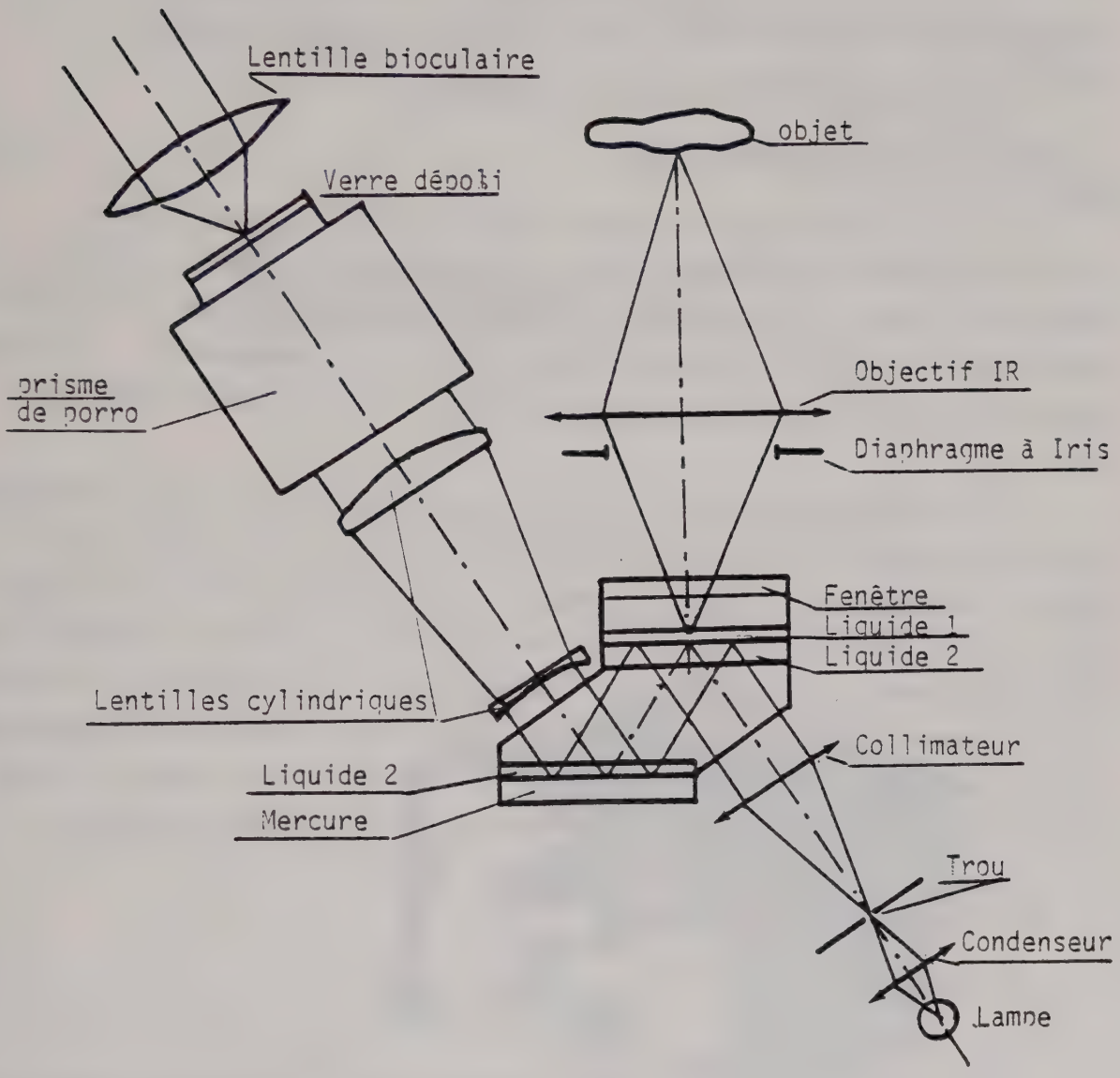


FIGURE 5 - Schéma de l'appareil

On y distingue 3 parties essentielles :

- la voie de réception infrarouge comprenant un objectif, un diaphragme à iris, et la cellule sensible ;
- la voie d'éclairage qui est un collimateur, comprenant une lampe, un condenseur, un diaphragme, et un objectif ;
- la voie de visualisation comprenant un ensemble afocal constitué de deux lentilles cylindriques, un prisme de Porro, un verre dépoli, et une lentille bi-oculaire.

1. Fonctionnement du dispositif

Une image infrarouge est formée sur le premier liquide. Celui-ci est alors chauffé inégalement selon la répartition thermique correspondante de l'image. L'effet Marangoni induit une convection dans la solution supérieure, la tension superficielle variant avec la température. La surface de contact entre les deux liquides se déforme alors et crée un objet de phase.

Si on éclaire cet objet en lumière parallèle avec un angle d'incidence tel que la réflexion sur la surface de contact entre les liquides soit totale, la déformation de cette surface est suffisante pour qu'une image soit visible sur un écran placé sur le trajet de la lumière réfléchie. Mais cette image apparaît à l'envers et anamorphosée. Pour corriger ces défauts, on place sur la voie de réception un ensemble afocal à lentille cylindrique de grandissement deux et un prisme de Porro qui redresse l'image. L'écran est alors un verre dépoli observé à travers une lentille bi-oculaire.

2. Description des éléments

a) La voie infrarouge

Elle comprend :

α) - la cellule sensible.(Un schéma de la cellule sensible est donné à la figure 6).

Elle se compose d'un rhomboèdre de verre et de deux cuves scellées sur deux faces parallèles du rhomboèdre.

La cuve supérieure recueille les deux solutions.

../..

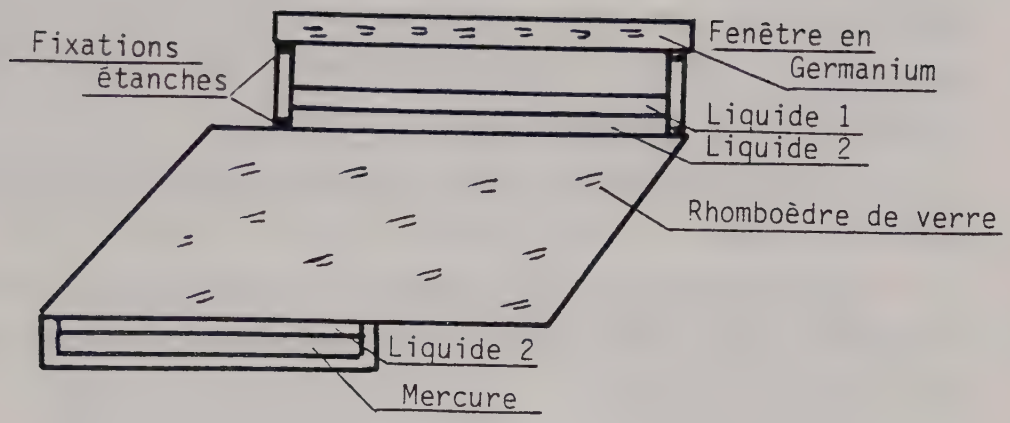


Schéma de la cellule

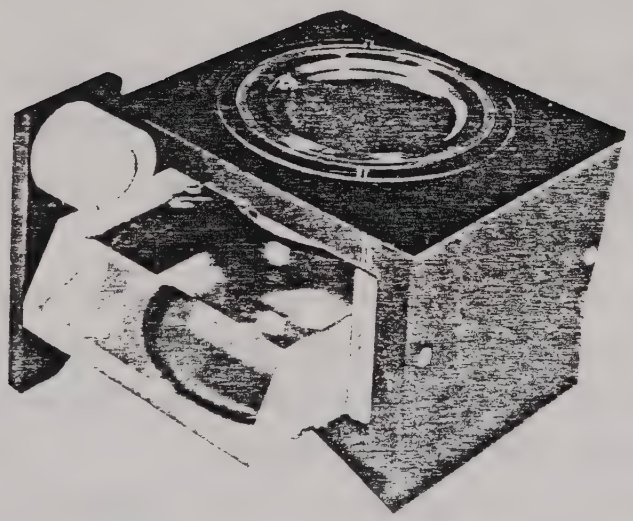


Photo de la cellule

Figure 6

La fenêtre supérieure est transparente à l'infrarouge ; elle est en Germanium.

L'ensemble de la cuve est étanche aux poussières et vapeur.

Les liquides ont une épaisseur de l'ordre de 100 µm et de 3 mm. La cuve inférieure contient essentiellement un bain de mercure qui est la deuxième face de réflexion du rhomboëdre optique. Il est protégé par un liquide d'indice identique à celui du verre.

Les dimensions de la surface de séparation des liquides sont de l'ordre de 40 mm x 40 mm. La zone utile est réduite à 25 mm x 25 mm.

L'angle de réflexion est de 60° ; les faces avant et arrière du rhomboëdre sont perpendiculaires au rayon moyen. Elles sont traitées anti-reflet dans le visible.

β) L'objectif infrarouge (Figure 7)

L'objectif est en Germanium. Il est calculé pour la longueur d'onde de 10 µm. Sa focale est de 75 mm, son ouverture de f/2, son champ de 25 mm. Son pouvoir séparateur n'affecte pas la qualité de l'image donnée sur la surface sensible. Celle-ci a un pouvoir séparateur de 6 traits par millimètre au maximum.

L'objectif est monté verticalement, au dessus de la surface sensible. Les réglages a prévoir sont la mise au point et le diaphragme.

La mise au point est réglable de 1 m à l'infini, et le diaphragme de f/2 à f/22.

Ces reglages sont effectuées au moyen de bagues sur l'objectif. Celui-ci est surmonté par un miroir de renvoi. Ce miroir est articulé en site entre 35° et 55°. Il est solidaire de l'objectif et la commande de site est solidaire de leur support commun.

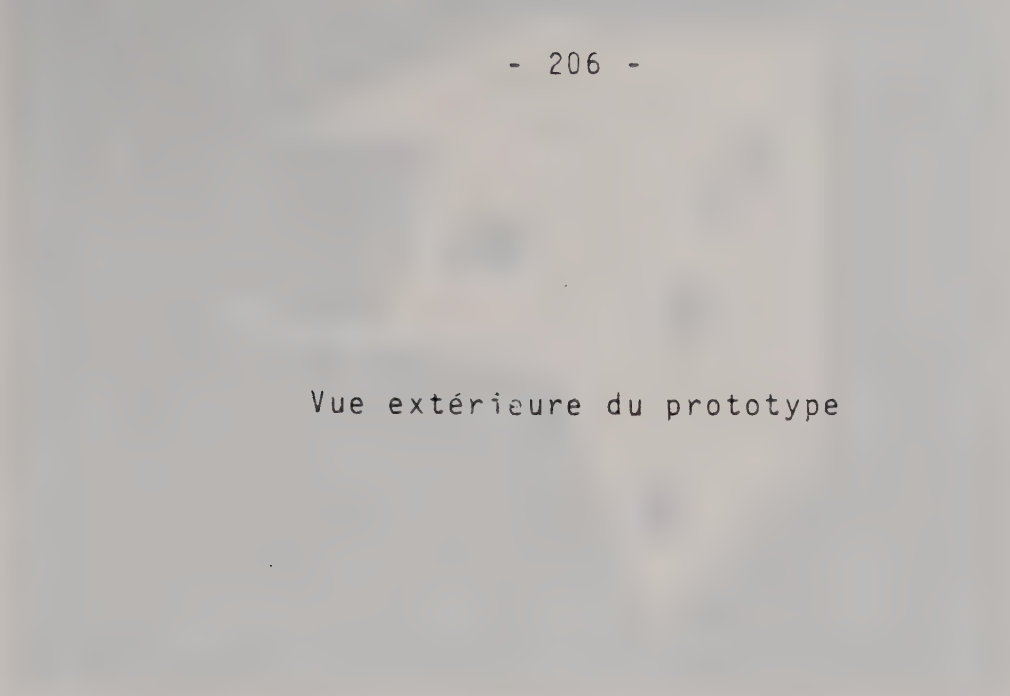
L'ensemble objectif plus miroir constitue un module.

b) La voie visible (Figure 7)

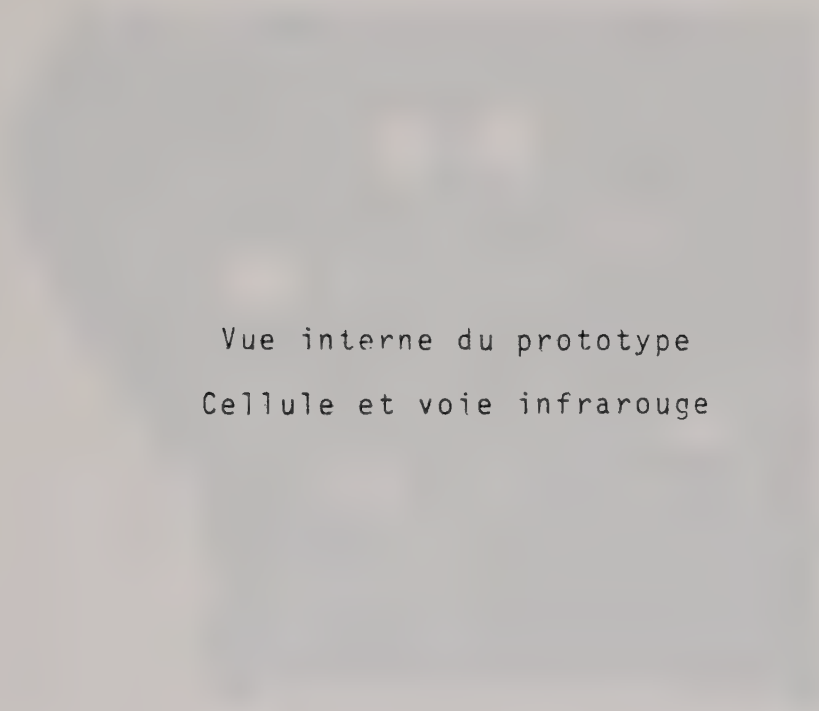
Elle comprend :

Un objectif ayant une focale de 105 mm et une ouverture relative de f/4 (ϕ utile = 25 mm). La tache de diffusion au centre du champ est de 0,5 mrd.

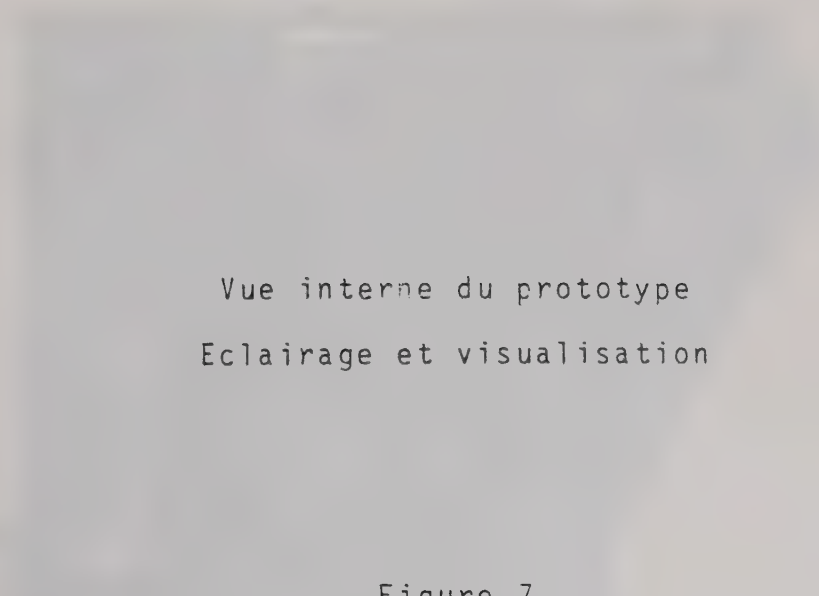
../..



Vue extérieure du prototype



Vue interne du prototype
Cellule et voie infrarouge



Vue interne du prototype
Eclairage et visualisation

Figure 7

Il est corrigé pour l'infini et traité pour le visible.

Le trou d'éclairage est circulaire, ϕ = 50 µm. Il est placé au foyer de l'objectif.

La lampe d'éclairage est une lampe à vapeur de mercure genre HBO 50 W/3 refroidie par une circulation de l'air.

Un condenseur de ϕ 15 mm et de focale 15 mm conjugue la lampe et le trou. Un filtre anti-calorique est placé entre la lampe et le condenseur, le plus près possible du condenseur.

Après réflexion totale sur le récepteur on utilise un afocal composé de deux lentilles cylindriques : une divergente de 10 dioptries (f = 100 mm), dont la zone utile est de 13 mm x 25 mm et une convergente de 5 dioptries (f = 200 mm) de 25 mm de diamètre.

Le prisme de Porro est composé de 4 miroirs montés en 2 dièdres perpendiculaires.

Le premier dièdre est fixe. Le deuxième dièdre mobile sur 10 cm parallèlement au rayon moyen incident.

L'écran est composé d'un verre dépoli sur une face, traité anti-reflet pour le visible. Il a sa face dépolie tournée vers la loupe.

La loupe a une focale de 80 mm, l'écran étant placé à 75 mm de son plan principal (image virtuelle à 1 m de l'écran).

L'ensemble objectif plus miroir, avec tous leurs réglages, constitue un module. De même l'ensemble lampe plus condenseur plus bioculaire constitue un deuxième module.

d) Originalité de l'appareil

L'imageur à interface liquide-liquide qui a été développé ici présente les avantages suivants :

- pas de balayage de la scène observée.
- pas de balayage de la couche sensible.
- pas de couche sensible à régénérer.
- pas d'électronique.
- simplicité extrême du systéme optique de visualisation.
- sans système cryogénique pour la couche sensible.

../..

- pas de vide nécessaire.
- une couche sensible particulièrement simple à réaliser et peu coûteuse.
- prix de revient faible.

Sur le plan technique, il est remarquablement simple (planche I), une vue générale de l'appareil est représentée sur la figure 7.

3. Résultats expérimentaux

a) Mélange binaire

Les photos présentées ont été prises avec un mélange binaire diphasique dont les caractéristiques sont les suivantes :

Fluides	Concentration à 20°C		densité en g cm^{-3}	viscosité poise	indice raie D
F_1	en huile 79 %	en $C_{10}H_7Br$ 21 %	1,02	0,028	1,433
F_2	5,25 %	94,75 %	1,45	0,050	1,635

Interface	Tension Interfaciale à 20°C dyne/cm
α_{a1}	19,6
α_{12}	$\sim$ 0,8

Epaisseur des couches $e_H \sim 100$ µm

$e_B \sim 3$ mm

Les figures de 1 à 6 (planche II) représentent les résultats obtenus pour divers objets à température ambiante.

FIG 1 - Main gauche. On remarque sur l'annulaire la présence d'une alliance.
FIG 2 - Profil d'une tête d'homme
FIG 3 - Profil d'une tête de femme
FIG 4 - Manche de pull-over à grosse maille
FIG 5 - clef plate nickelée
FIG 6 - Images de deux clefs plates nickelées.

../..

THERMOGRAPHIE I.R.

IMAGERIE THERMIQUE

Planche I

DESCRIPTION :

Le THERMOGRAPHE I.R. SOPELEM est un convertisseur d'image I.R./visible de conception entièrement optique.

Il permet de transformer une image infra-rouge en une image exploitable dans le visible.

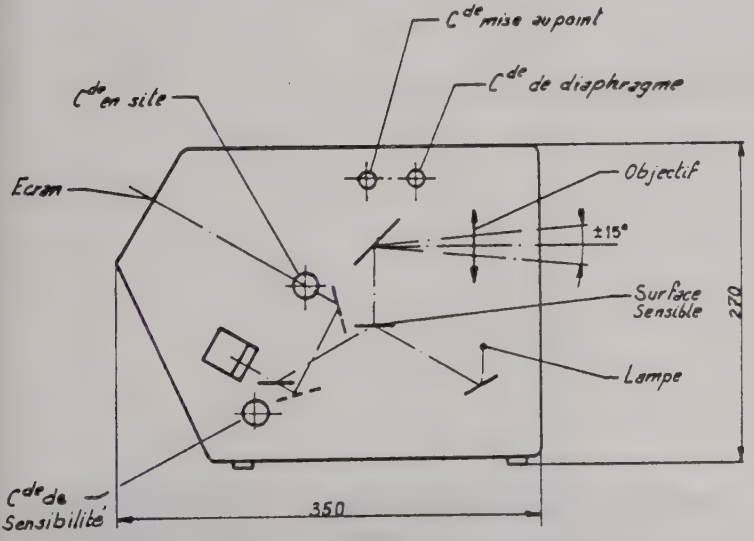
La surface sensible est un liquide qui se déforme sous l'action du rayonnement I.R.

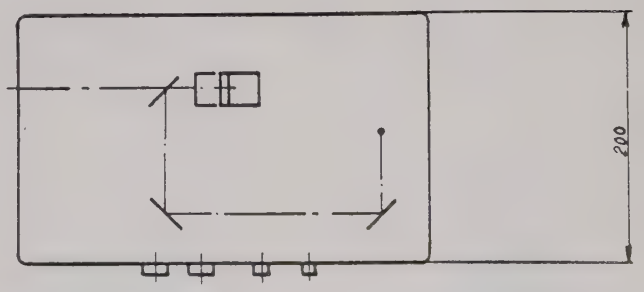
CARACTERISTIQUES :

- Détection simultanée de toutes les différences de température.
- Visualisation d'une image I.R.
- Système purement optique. . (reprise d'image par T.V.)
- Pas de système de refroidissement.
- Pas de mouvement mécanique de balayage (formation globale de l'image).
- Niveau de prix peu élevé.

QUELQUES EXEMPLES D'APPLICATION DE LA THERMOGRAPHIE I.R. :

- Contrôle de points chauds (circuits électroniques, arbre de moteur).
- Fuite dans un four (état des réfractaires).
- Etat d'un calorifugeage.
- Collage.
- Détection de gradient de température.
- Déperdition de chaleur dans un bâtiment.
- Etc . . .





SPECIFICATIONS :

- Bande spectrale : fenêtre de 8 à 14 µm
  + fenêtre de 3 à 3,5 µm
- Optique : au germanium F = 75 mm ouvert à f/2 avec mise au point réglable de 1 m à l'infini.
  bonnette F = 200 mm mise au point à 200 mm (a^{u} 1,3mm) champ = 65
- Champ : fonction de l'objectif utilisé : pour F = 75 mm champ total 20°.
- Domaine de température : sensible à partir de 0°C.
- Résolution thermique . 1°C à f/2 et à 20°C
  5°C à f/8 et à 300°C.
  20°C à f/16 et à 300°C.
- Temps de stabilisation de l'image après mise en station : 1 mn (formation de la surface sensible).
- Temps de montée de l'image : quelques dixièmes de seconde.
- Temps de rémanence : environ 1 seconde.
- Angle de vision : ± 15° par rapport à l'horizontale.
  Miroir de renvoi pour d'autres angles de vision (option).
- Température extérieure : 10 à 30°C.
- Pression atmosphérique : sans influence.
- Humidité : sans influence.
- Encombrement : voir croquis au verso
- Horizontalité : ± 1° réglable par 3 vis calantes.
- Résolution intrinsèque de la couche sensible 2,5 à 3 paires de ligne/mn (équivalent TV u 125 lignes)
- Dimension utile de la cellule sensible = 25 mm
- Influence nulle des champs électrostatiques et électromagnétiques en visualisation directe.
- Visualisation sur dépoli et reprise d'image par T.V.
- Possibilité de photographie, d'analyseur d'images, etc...

NOTA : SPECIFICATIONS SUSCEPTIBLES D'EVOLUER SANS PREAVIS.

sopelem SOCIETE D'OPTIQUE, PRECISION, ELECTRONIQUE ET MECANIQUE
102, rue Chaptal 92306 LEVALLOIS-PERRET – FRANCE – Tél. (1) 757.31.05
Télex : 620 111 – Câble : precioptic - Levallois – SIRENE : 775 695 067 000 22

PLANCHE II

Fig 1

Fig 2

Fig 3

Fig 4

Fig 5

Fig 6

Les parties chaudes correspondent à des zones brillantes. Les parties froides à des zones sombres.

La clef gauche est à température ambiante. Celle de droite (Figure 6) à été refroidie dans de la glace. On constate une inversion de contraste entre les deux images. Ceci s'explique par l'inversion de la courbure de l'interface liquide-liquide.

b) Mélange ternaire

L'avantage d'utiliser le mélange ternaire par rapport au mélange binaire est démontré dans l'article suivant : "Thermal imaging system with a two-phase ternary mixture of liquids".

La sensibilité thermique de l'appareil dépend de la valeur de la tension interfaciale. Les caractéristiques physico-chimiques des deux mélanges sont à peu près les mêmes. Cependant, la tension interfaciale du mélange ternaire est 16 fois plus faible que celle du mélange binaire. A épaisseur égale pour la solution supérieure, le mélange ternaire est donc 16 fois plus sensible que le mélange binaire. Ce résultat est prouvé qualiquativement par les photographies de l'article, bien que l'égalité de l'épaisseur de la solution supérieure n'est pas été vérifiée avec précision.

Volume 45, number 3 OPTICS COMMUNICATIONS 1 April 1983

THERMAL IMAGING SYSTEM WITH A TWO-PHASE TERNARY MIXTURE OF LIQUIDS*

J.C. LOULERGUE, Y. LÉVY and C. IMBERT
I.O.T.A., Université Paris-Sud, B.P. 43, 91406 Orsay Cédex, France

Received 28 October 1982

A new infrared camera operating between 8 and 12 μm is described. The thermo-optical properties of two superposed fluid layers are used. It is shown that the modulation of the fluid–fluid interface, due to the infrared image, of a two-phase ternary mixture can be made much larger than with a two-phase binary one. Making this modulation visible, is the principle of a sensitive IR-visible image converter.

1. Introduction

We describe in this article an infrared-image converter using the fluid–fluid interface deflections induced by the Marangoni effect. We show that the thermal sensitivity obtained with a two-phase ternary system, is considerably greater than with a binary system.

The most common infrared camera uses a small area detector and a scanning of the object field. These devices are capable of both high sensitivity and high speed, but they are very expensive and in most cases the detector must operate at a low temperature [1]. Another type of infrared camera consists of a large sensitive surface scanned by an electron [2] or photon beam [3]. They operate at room temperature but these systems have in common that the sensitivity is rather poor in comparison with a scanning infrared converter. Otherwise, other image converters work without scanning. These devices [4–6] are very sensitive but are generally slow and have suitable sensitive layer technically difficult to make. In this paper, we present a new kind of camera [7] without scanning using a thermo-optical converter (TOC), that avoids most of the drawbacks mentioned above. Operating at room temperature, it makes it possible to integrate the infrared flux at each point of the detector, thus enhancing the sensitivity. The detector works at normal pressure and its large sensitive surface is technically easy to obtain. This thermal image system is a pure passive device which needs no long term storage ability. Rise and fall time are of the order of 0.1–1s.

* This work was supported by DRET (no·77/167; 79/180) and ANVAR.

2. Principle of operation of TOC

Surface tension effects have already attracted must attention, mainly because they are the driving mechanism of a large class of instabilities [8] and also in practical problems such as spatial light modulators [9,10], holographic recording medium [11], thermal imaging systems [6,12]. It is known [13] that temperature variations in an oil layer lead to surface deformations. In the systems described [9–12] the intensity of the IR input radiation field is converted into localized heat by absorption. This absorption occurs either in the one-fluid layer [5,10,12] or in a special absorbing layer [4, 6,9,11]. Here we consider two superposed fluids which have led to an infrared image converter by IR absorption in the upper fluid [7].

Fig. 1 describes the principle used for the TOC. An infrared radiation emitted by an object point, is focussed on the top of the upper medium which possesses a strong absorption in the infrared range (8–11 μm). Accordingly, the inhomogeneous local heating which appears in the upper fluid, induces a thermal modulation of the surface tension at the interface I_{a1}. Tractions due to this surface tension modulation, results in motion of the fluid and distorsions of its interfaces.

This "Marangoni effect" can also have different physico-chemical origins [14].

0 030-4018/83/0000–0000/$ 03.00 © 1983 North-Holland

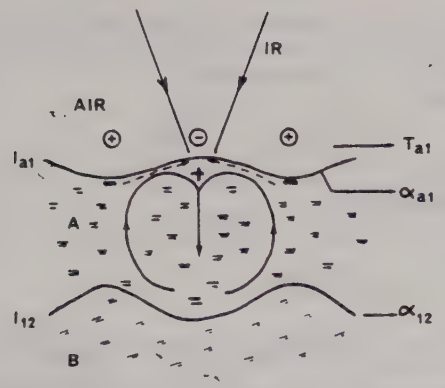


Fig. 1. Qualitative description of the Marangoni effect. The – and + signs for the upper surface temperature T_{a1} denote the cold and hot regions where IR radiation is or is not concentrated. Here the point IR object is colder than the TOC. The subsequent modulation of the upper surface tension α_{a1} is suggested by the variable signs + or – under I_{a1}. We suppose the lower surface tension α_{12} constant. The dashed arrows just below I_{a1} indicate the direction of tractions induced by this modulation and thicker arrows suggest the motion of the upper fluid.

The basic arrangement of the TOC, performing the conversion of an infrared image into a visible one, is shown in fig. 2. Optically, the two fluids A and B are characterised by their refractive indice n_1 and n_2. If $n_2 > n_1$, a visible beam undergoes the total reflection on the I_{12} interface, if the incidence angle is greater than the critical angle. The reflected beam is then only perturbed by the I_{12} surface and not by the I_{a1} interface. Without infrared radiation, or with an uniform infrared illumination of the I_{a1} surface, the I_{a1} and I_{12} interfaces are flat and the visible collimated beam is totally reflected, leading to an uniform intensity distribution on the screen. This is not the case for a small infrared object O. The local deflection, due to the Marangoni effect, produces a focussing of the visible light on the screen: the bright point O″ is the visible image of the infrared point O. If we project an infrared image of an extended object, each point of the image will distort the I_{12} interface and give an irradiance modulation of the reflected visible light. Thus we produce a visible image of the object on the screen. It is surprising that a visible image can be produced in this way without an optical lens.

A system with only one fluid may look less complicated than the present one. But the calculation of the amplitudes of deformations of I_{a1} and I_{12} interfaces shows that the I_{12} deflection is strongly enhanced relative to the I_{a1} interface deformation.

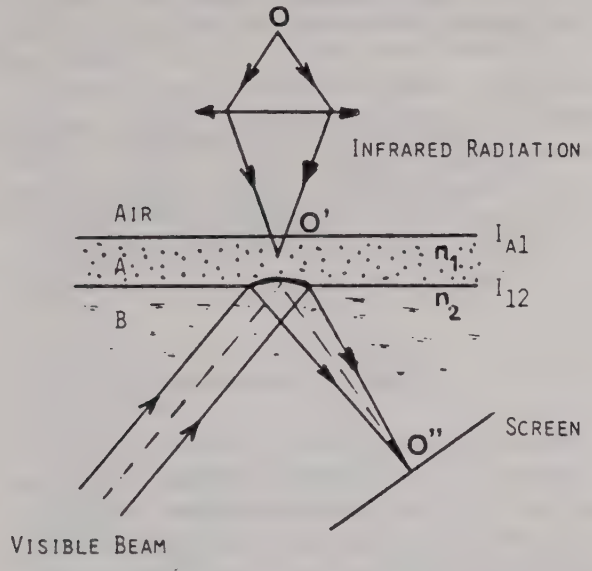


Fig. 2. Arrangement of the TOC. O is a point IR source. Here the object is hotter than the TOC. O′ is the IR image of O. O″ is the visible image of O. The flow in the upper fluid and the deflection at the upper free surface of the system are not indicated.

3. Determination of interface deflection

The calculation in some details is given in ref. [15]. Here we shall present some of the results and advantages of the two-fluid system. We assume a temperature perturbation $\Delta T(x)$ at the interface I_{a1} (IR image of a grid of period p) periodic in the x direction and independent of y (fig. 3).

$$\Delta T(x) = \overline{\Delta T} \sin kx,$$

$k = 2\pi/p$ is the wave-vector of the perturbation. We denote α_{a1} and ξ_{a1} the surface tension and interface deflection at I_{a1}, and similarly α_{12}, ξ_{12} at interface I_{12}. The dimensionless capillary lengths of I_{a1} and I_{12} are

$$\Lambda_{a1} = \frac{1}{h_1}\left|\frac{\alpha_{a1}}{\rho_1 g}\right|^{1/2}, \qquad \Lambda_{12} = \frac{1}{h_1}\left|\frac{\alpha_{12}}{(\rho_2-\rho_1)g}\right|^{1/2},$$

where $h_i, \rho_i, \eta_i, (i = 1,2)$ are the thicknesses, densities and viscosities of the two fluids.

The upper deflection has an amplitude [15]

Volume 45, number 3 OPTICS COMMUNICATIONS 1 April 1983

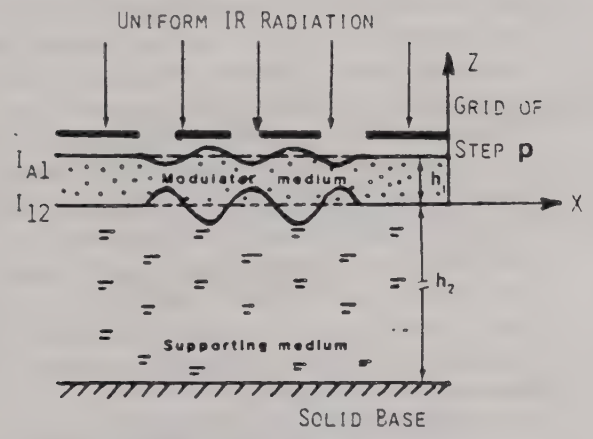


Fig. 3. Thermocapillarity induced by absorption of an uniform IR beam spatially modulated by a grid of transparent and opaque bars of period p. This results in a corresponding modulation of I_{a1} and I_{12}; the lower the surface tension, the greater is the deformation.

$$\bar{\xi}_{a1} = \frac{-\beta \overline{\Delta T}}{\rho_1 g h_1} \frac{\eta_{1/2} + \delta}{S(C + \eta_{1/2} S) - \delta} \frac{\delta^2}{1 + \delta^2 \Lambda_{a1}^2}$$

and for the lower deflection

$$\bar{\xi}_{12} = \frac{\beta \overline{\Delta T}}{(\rho_2 - \rho_1) g h_1} \frac{S + \eta_{1/2} C}{S(C + \eta_{1/2} S) - \delta} \frac{\delta^2}{1 + \delta^2 \Lambda_{12}^2},$$

with $\delta = kh_1$, $C = \cosh\delta$, $S = \sinh\delta$, $-\beta = \partial \alpha_{a1}/\partial T$, $\eta_{1/2} = \eta_1/\eta_2$.

To stress the advantages of the two fluids system, we examine the relative amplitude R of the two interface displacements

$$R = \left| \frac{\bar{\xi}_{12}}{\bar{\xi}_{a1}} \right| = \frac{\rho_1}{\rho_2 - \rho_1} \frac{S + C\eta_{1/2}}{\delta + \eta_{1/2}} \frac{1 + \delta^2 \Lambda_{a1}^2}{1 + \delta^2 \Lambda_{12}^2}.$$

The deflection values which are very close, and ratio R are function of the superficial tension α_{a1} and the interfacial tension α_{12} through the capillary lengths Λ_{a1} and Λ_{12}. We shall analyse later some particular cases where the influence of the spatial frequency are displayed in figs. 4 and 5 for two different mixtures of liquids. The interfacial tension α_{12} of the ternary configuration is more than an order of magnitude lower than the binary system. The measured values are given in table 1 and 2. It is clearly seen in fig. 4 that the ternary mixture provides higher values of $\bar{\xi}_{12}$ than the binary one. Remembering that the two configurations have α_{a1}, fig. 5 shows that the ternary system yields a strong amplification of the ξ_{12} deflection.

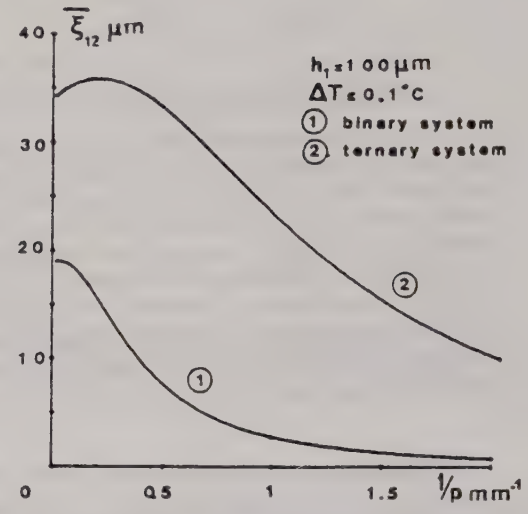


Fig. 4. Interface displacement $\bar{\xi}_{12}$ as a function of the spatial frequency p^{-1} for two different mixtures: curve 1, binary mixture of Si oil SI 200/3 and $C_{10}H_7Br$; curve 2, ternary mixture of Si oil SI 200/0.65 and $C_{10}H_7Br + C_{10}H_7I$. Characteristics of fluid of these combinations are given in tables 1 and 2.

Some approximate expressions can be derived from the general formulas:

– At small δ (low spatial frequency) i.e. $h_2 \gg p \gg h_1$ and $p \ll L$ (the lateral extent), one gets:

$$R \sim \rho_1/(\rho_2 - \rho_1),$$

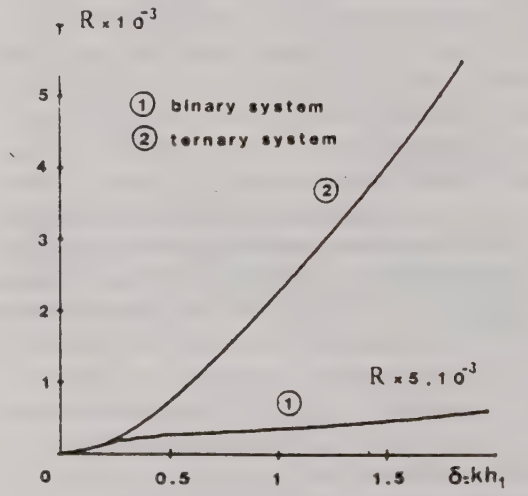


Fig. 5. Amplification ratio as a function of the reduced wavevector $\delta = kh_1$ for the two different superposed mixtures. Thickness of the upper layer ~ 100 µm.

Table 1
Data at 20° for fluids used in the apparatus. $C_{10}H_7Br$ + Si Oil 200/3

Solutions	Concentrations		Refractive index line D	Density g cm^{-3}	Viscosity poise	Surface tension dyne cm^{-1}
	Si Oil	$C_{10}H_7Br$				
A (upper)	79%	21%	1.4335	1.02	0.028	I_{a1} = 19.6
B (lower)	5.25%	94.75%	1.6352	1.45	0.050	I_{12} = ~0.8

Table 2
Data at 20° for fluids used in the apparatus. $C_{10}H_7Br$ + Si Oil 200/0.65 + $C_{10}H_7I$

Concentrations		Solutions	Refractive index line D	Density g cm^{-3}	Viscosity poise	Surface tension dyne cm^{-1}
$C_{10}H_7Br$	62.50%					
Si Oil	31.25%	A (upper)	1.46	0.97	0.9	I_{a1} = 16.3
$C_{10}H_7I$	6.25%	B (lower)	1.55	1.20	2.3	I_{12} = 0.05

which can be made large enough by choosing fluids of comparable densities.

– At large δ (high spatial frequency)

$$R \sim \frac{\alpha_{a1}}{\alpha_{12}} \frac{\eta_1 + \eta_2}{2\eta_2} \frac{\exp(\delta)}{\delta},$$

the ratio α_{a1}/α_{12} describes the amplification one obtains in reducing the interfacial tension between the two fluids.

Finally the response of the fluid–fluid interface can be made much larger than the air–fluid one, by using fluids of similar mass-densities and low mutual surface tension. It is easily seen that these requirements not only increase the amplification ratio between $\bar{\xi}_{12}$ and $\bar{\xi}_{a1}$ but also enhance the absolute magnitude of the response at the fluid–fluid interface I_{12}.

4. The fluid–fluid interface of the TOC

The mixture of partially miscible liquids presents a particular advantage in producing an optically plane low surface tension liquid–liquid interface. After mixing the two liquids we obtain two mutually saturated solutions A and B which yield in mechanical equilibrium, a sharp optically plane surface of separation. The concentration of one of the components in either solution A or B depends only upon the temperature and pressure of the system [16]. As a function of these parameters a saturated solution A may be obtained at a particular concentration as a thin liquid layer of uniform thickness, adjustable as desired on a liquid support regardless of its surface. In our case this thickness is between 60 and 200 μm. It possesses a surface tension highly dependent on the temperature. This condition contributes to the sensitivity of the device. The surface tension variation of I_{a1} is of the order of –0.08 dyne/cm °C at 20°C. The interfacial tension between the solution A and B is of the order of 1 dyne/cm (binary mixture) or less (ternary mixture) at ambient temperature. It becomes zero at the critical temperature of miscibility. Then the two-phase system disappears and a single liquid phase takes its place. In addition the system is stable i.e. when the saturated solutions are stirred they mix, then the separation occurs quickly (~ 30 s) under the force of gravity and solutions A and B regain their original equilibrium. Best results have been obtained with two kind of mixtures: a binary combination of silicon oil (SI 200/3) monobronaphtalene ($C_{10}H_7Br$) and a ternary combination of silicon oil (SI 200/0,65) monobronaphtalene and α-iodonaphtalene ($C_{10}H_7I$). Characteristics of these combinations are given in tables 1 and 2. It can be seen that the interfacial tension is only 4% of α_{a1} for the first mixture and 0.3% for the second mixture. A substantial increase of sensitivity is thus expected.

Volume 45, number 3 OPTICS COMMUNICATIONS 1 April 1983

5. Experimental set-up

The sketch of the device, given in fig. 6 is very simple. A previously saturated mixture of two liquids is deposited on one of the faces of a prism, in a cell of diameter 60 mm. At rest, we obtain two solutions superposed in equilibrium with each other, producing an optically plane low surface tension liquid–liquid interface. The two solutions must be different as regards refractive index and density. The upper layer A has a smaller index of refraction than the solution B. It has also infrared absorbing properties in the 8–11 μm spectral band (absorption coefficient $\sim 760\ \mathrm{cm}^{-1}$) which is an atmospheric window corresponding to the maximum emission of the bodies at ambient temperature. The saturated solution B which is denser than solution A, is in contact with the prism P, with the same index of refraction. Thus, the rays of a collimated visible beam see the same refractive index until they reach the liquid–liquid interface I_{12}.

The apparatus uses an infrared optical system which forms the infrared image of the object on the free surface of solution A, through a window plate of germanium. We used a spherical mirror for the plate I of focal length $f = 150$ mm and aperture $f/2$, and a germanium objective of same focal length and aperture, for the plate II (fig. 7).

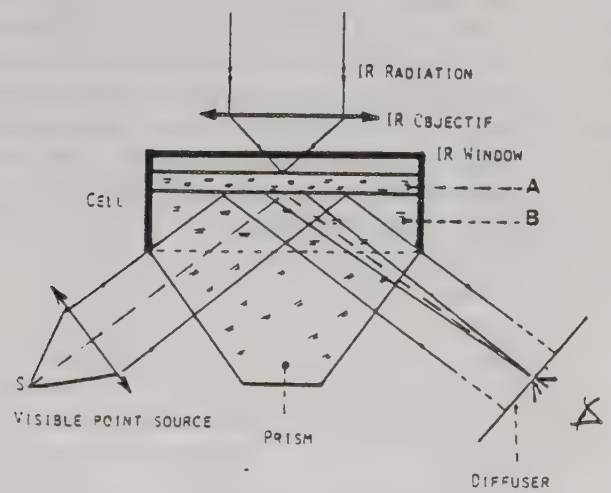


Fig. 6. Principle of the technical set-up.

6. Experimental results and comments

The visible beam totally reflected by the interface I_{12} is not sensitive to the displacement itself but to the curvature of I_{12}, i.e. to $-k^2 \xi_{12}$. The analysis of the in-

Fig. 7. Plate I: Photograph of a man in darkness (binary mixture). Plate II: Photograph of a stool in darkness. The seat is in wood and the legs in metal (ternary mixture). The apparatus is sensitive to IR intensity differences and in the general case the formation of an image from the temperature gradients (plate I) and emissivity gradients (plate II) on the surface of the object.

tensity distribution of light on the screen is not straightforward because the contrast of the image of a grid depends both on the distance of the screen from the prism, and on the spatial frequency of the grid [17]. This is due to the fact that for every period p of the I_{12} profile there exists an optimal distance for the convergence of light reflected by the modulated interface. This makes any direct quantitative comparison difficult and involves more optical considerations. Potential qualities of the system are best shown by fig. 7.

The most important question which comes after sensitivity is that of response time. Several steps are observed. First there is a time during which nothing seems to happen. It corresponds to the time necessary for a convective flow generated at the upper surface to reach the interface below. This should be of the order of $\rho_1 h_1^2/\eta_1$ which is $\sim 5 \times 10^{-2}$ s for $h_1 \sim 0.1$ mm. Then comes the rise time itself during which the amplitude of the interface displacement grows. In practice as the flow develops, it is more and more efficient in transporting heat and making the temperature uniform. This tends to limit the deformation level and consequently the rise time is somewhat larger. The stationary state results from a compromise between thermal difusion and convection and thus the ultimate growth is certainly controlled by the thermal diffusivity $D = K_1/\rho_1 C_{p_1}$ (K_1 is the thermal conductivity, C_{p_1} the specific heat of the upper layer). The ratio between vorticity diffusivity, (or kinematic viscosity: $\nu_1 = \eta_1/\rho_1$) and D is called the Prandtl number [8], here typically 50. This mean that the thermal diffusivity time is 50 times larger than the viscous time.

7. Conclusion

Exploiting the very critical dependence of the thermal sensitivity as a function of the interfacial tension this new kind of infrared image converter using a ternary mixture, results in a combination of sensitivity (thermal resolution on the object $\sim 0.2^\circ$C) and high simplicity.

The results are for the time being essentially limited by the thickness of the upper layer and the resolution of the reading system. It is clear that the optical part deserves a thorough study in order to optimise the design of the set-up. Such a study could in turn have interesting applications for the determination of physica and hydrodynamical quantities at a fluid–fluid interfa

Acknowledgment

The authors would like to thank G. Roger and V. Lanfant for their collaborations and their helpful discussions in developping the experiment. The authors would also like to express their appreciation to SOPELEM, Paris, France, for contributing the apparatus used for one of the plate (ternary mixture).

References

[1] See for example, J.M. Lloyd, Thermal imaging systems (Plenum Press. 1975).
[2] Pyricon, An introduction to modern thermal imaging technology, Thomson-CSF, Application Note APV - 6075 (November 1975).
[3] Y.B. Andre, J.P. Chambaret, M.A. Franco and B.S. Prade Appl. Optics 18 (1979) 2607.
[4] J.C. Loulergue, Nouvelle revue d'Optique Appliquée, Tome 3 (1972) p. 95–102.
[5] R.D. Ennulat and J.L. Fergason, Molecular crystals and liquid crystals, Vol. 13 (1971) p. 149–164.
[6] F. Mast and U. La Roche, Proc. Int. Electro-Optical Design Conf. Brighton 1971.
[7] C. Imbert, Y. Lévy and J.C. Loulergue. ANVAR Patent 78-28041.
[8] C. Normand, Y. Pomeau and M.G. Velarde, Rev. Mod. Phys. 49 (1977) 581.
[9] F. Laeri, B. Schneeberger and T. Tschudi, Optics. Comm 34 (1980) 23.
[10] G. Da Costa, Applied Optics 19 (1980) 3523.
[11] M. Cormier, M. Blanchard, M. Rioux and R. Beaulieu, Appl. Optics 17 (1978) 3622.
[12] E. Heintz, J. Physique 7 (1946) 293.
[13] J.R.A. Pearson, J. Fluid Mech. 4 (1958) 489.
[14] L.E. Scriven and C.V. Sterling, J. Fluid Mech. 19 (1964) 321.
[15] J.C. Loulergue, P. Manneville and Y. Pomeau, J. Phys. D: Appl. Phys. 14 (1981) 281.
[16] Fleury et Mathieu, Thermodynamique (Masson) p. 192–195.
[17] J.C. Loulergue, Thin solid Films 82 (1981) 61.

IV - UNE EXPERIENCE PAR TRANSMISSION

A Description du montage

Le dispositif comporte quatre parties (figure 8).

a) système IR. Il est identique à celui utilisé par réflexion

b) cellule IR. Le système diphasique est binaire, mais il est placé sur une lame à faces parallèles et non sur un prisme.

c) faisceau de lecture. Un faisceau collimaté traverse la cellule IR. L'onde émergente est déformée par la modulation de l'interface. Ces déformations se traduisent par des retards de phase. Au point de focalisation de l'onde émergente, on place un filtre opaque, une pastille, qui arrête les rayons non déviés.

d) système d'observation. A l'aide d'un viseur dioptrique on observe l'interface liquide-liquide. Les zones correspondantes aux rayons arrêtés par le filtre apparaissent en sombre, les zones correspondantes aux rayons transmis apparaissent brillantes.

On met en évidence ainsi le "relief de phase" de l'onde perturbée.

B Résultats

La photographie de la figure 9 représente le profil d'une main sur un fond à température ambiante.

C Comparaison des deux méthodes de détection de l'interface

a) Avantages de la méthode par transmission

Plan de mise au point : le plan de mise au point est fixe. C'est le plan de l'interface liquide-liquide.

Anamorphose : du fait que l'on travaille en incidence normale sur la couche et non plus en incidence oblique, il y a suppression de l'anamorphose de l'image.

Contraste : Le contraste est amélioré ; on coupe totalement le faisceau de rayons non déviés (zone noire) pour laisser passer les rayons déviés (zone claire). Le contraste théorique est 1, mais il est abaissé par les défauts des éléments optiques et l'instabilité de l'interface.

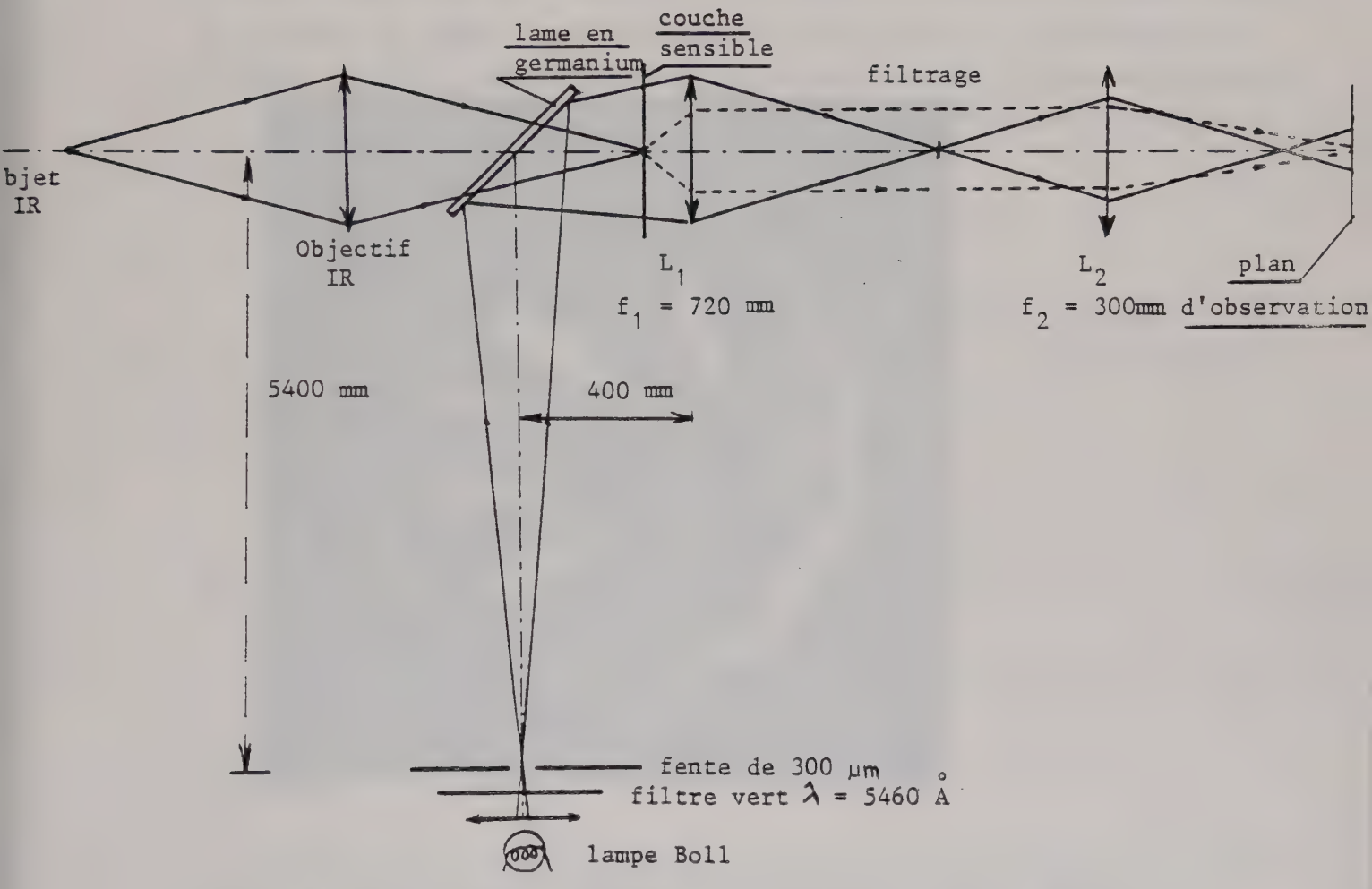


FIGURE 8

Schéma du montage par transmission avec

filtrage par strioscopie

Image d'une main observée par transmission à travers un système diphasique par strioscopie.

FIGURE 9

b) Inconvénients de la méthode

Netteté de l'image : la netteté n'est pas améliorée, le passage d'une plage sombre à une plage claire se fait sur une certaine distance ($\sim$ 2 mm).

Dans la méthode par réflexion, l'objet est reproduit grâce à l'effet de convergence de l'interface liquide-liquide. Dans ce cas, les contours semblent plus nets. En effet, la convergence du faisceau réfléchi n'est obtenu que dans le voisinage du sommet de la déformation et ailleurs il y a divergence du faisceau. L'effet de convergence est plus localisé que l'effet de déformation lui-même. La méthode par réflexion permet donc de s'affranchir en partie de la largeur de la déformation.

c) Résolution thermique

La méthode par transmission est moins sensible que celle par réflexion. Pour une même amplitude de déformation e de l'interface, la déformation de l'onde en chemin optique est :

$\delta_1 = 2n_2 e \cos\theta$ (n_2 : indice du liquide inférieur) dans le cas de la réflexion.

$\delta_2 = (n_2 - n_1)e$ (n_1 : indice du liquide supérieur) dans le cas de la transmission. e est la déformation de l'interface liquide-liquide (cf. Fig. 2, Chapitre V)

On perd environ un facteur 6. Mais, ceci peut-être compensé par un gain en sensibilité du système d'observation.

D - CONCLUSION

La méthode par transmission avec filtrage apporte des améliorations par rapport à la méthode par réflexion : plan d'image, absence d'anamorphose, contraste meilleur. Cependant, la netteté des images n'est pas améliorée. La méthode n'est pas adaptée pour ce genre de problème, bien qu'elle ait quelques avantages.

V - CONCLUSION

Nous avons montré la faisabilité d'un transformateur d'images infrarouges basé sur l'effet Marangoni amplifié par la déformation d'une interface liquide-liquide. Cet effet est très sensible thermiquement comparé à d'autres (voir Tableaux I et II) {3}.

A - Les résultats acquis

Actuellement, les performances obtenues avec le prototype utilisant le meilleur mélange (mélange ternaire) sont les suivants :

1) Résolution thermique : elle est estimée entre 0,5 et 1°C pour un objet à température ambiante, avec une émissivité globale égale à 1 entre 2 µm et 14 µm (voir chapitre VI). Ce résultat est considéré comme remarquable compte tenu de la simplicité de la couche sensible.

2) Résolution spatiale : elle est de 3 paires de lignes par millimètre (pl/mm) pour un niveau d'entrée de 25°C (écart de température entre la grille et le fond, tous deux ayant une émissivité prise égale à 1) et de 2 pl/mm pour un niveau de quelques degrès (voir chapitre V).

3) Constante de temps : elle dépend du niveau d'entrée et de la fréquence de l'objet irradiant. Typiquement, pour un niveau d'entrée de 10°C, elle est de 0,2 seconde pour une fréquence spatiale de 0,5 pl/mm et de 0,5 seconde pour 1 pl/mm (voir annexe III, contrat d'aide à l'Innovation).

B - Les améliorations possibles

Le mélange ternaire qui fonctionne convenablement depuis deux ans prouve la fiabilité à moyen terme de la couche sensible. Toutefois, malgré la bonne sensibilité de ce mélange, la résolution spatiale et la vitesse sont encore à améliorer.

1) Amélioration de la résolution spatiale : elle dépend de l'épaisseur de la couche supérieure et de la résolution du système de visualisation. Il

../..

TABLEAU I

Gaz parfait	$\frac{dP}{PdT} \cong 4\ 10^{-3}\ °C^{-1}$	Dilatation thermique des gaz	Détecteur pneumatique de Golay et de Luft
Résistance électrique	$\frac{d\rho}{\rho dT} \cong$ de 10^{-2} à $10^{-3}\ °C^{-1}$	Variation thermique de la résistivité	Détecteur bolométrique Thermicon infrared Caméra tube
Bord d'absorption d'un matériau	$\frac{dT}{TdT} \cong 2\ 10^{-2}\ °C^{-1}$	Variation thermique de la transmission du Se dans le visible	Caméra IR à bord d'absorption
Indice de réfraction	$\frac{1}{n} \cdot \frac{dn}{dT} \cong$ de 10^{-4} à $10^{-3}\ °C^{-1}$	Variation thermique de l'indice de réfraction des liquides	Imageur IR par réflexion totale
Tension superficielle	$\frac{1}{\alpha} \cdot \frac{d\alpha}{dT} \cong 5\ \ 10^{-3}\ °C^{-1}$	Variation thermique de la tension superficielle	Bolomètre à tension de surface (Panicon)
Pyroélectricité	$\frac{1}{p} \cdot \frac{dp}{dT} \cong 10^{-2}\ °C^{-1}$	Variation thermique du m^t dipolaire électrique permanent d'un cristal	Vidicon pyroélectrique (Pyricon)
Cristaux Liquides	$\frac{1}{r} \cdot \frac{dr}{dT} \cong 0,5\ °C^{-1}$	Variation thermique du pouvoir rotatoire	Caméra infrarouge à cristal liquide
Changement de phase d'un liquide	$\frac{1}{v} \cdot \frac{dv}{dT} \cong 10^{-3}\ °C^{-1}$	Variation thermique de la vitesse d'évaporation d'un film liquide	Evaporographe
Tension interfaciale	$\frac{1}{\alpha'} \cdot \frac{d\alpha}{dT} = 10\ °C^{-1}$	Variation thermique de la tension interfaciale	Objet de la présente étude

(Bibliographie 3-1 et 3-2)

TABLEAU II

Nature du phénomène thermique utilisé	éclairement minimum détectable valeurs expérimentales	Modes de lecture de l'image thermique	
Fluorescence (phosphore)	510^{-4} W/cm^2	Diffusion de la lumière	{3-c
Cristaux liquide (cholestérique)	510^{-5} W/cm^2	Diffusion de la lumière	{3-e
Pyroélectricité (TGS)	$\sim 10^{-5}$ W/cm^2	Signal vidéo	{3-a
Evaporographie (huile)	$\sim 310^{-5}$ W/cm^2	Couleurs interférentielles	{3-f
Effet Marangoni : Système monocouche	$\sim 510^{-5}$ W/cm^2	Strioscopie	{3-g
Système bicouche	$\sim 310^{-5}$ W/cm^2	Ombroscopie	

a été montré (chapitre V), que la limitation de 3 pl/mm est dûe au procédé de visualisation de la déformation de l'interface liquide-liquide. L'ombroscopie par réflexion totale bien que sensible et très simple ne peut révéler que des détails supérieurs ou égaux à 300 µm sur la couche . Ce procédé de visualisation n'est pas capable d'exploiter la résolution hydrodynamique du film mince. En effet, pour une épaisseur h_1 de la couche supérieure, la résolution hydrodynamique est de l'ordre de 2 h_1. Ainsi, avec h_1 = 100 µm, l'appareil doit résoudre environ 200 µm sur la couche sensible soit 5 pl/mm.

2) Amélioration de la réponse temporelle

L'étude temporelle effectuée avec le prototype contenant le mélange ternaire (voir Annexe III) a permis de contaster que les basses fréquences de l'image (entre 0,5 et 1,5 pl/mm) apparaissent d'abord avant les hautes fréquences (entre 1,5 et 3 pl/mm). Ceci est dû au fait que la réponse de l'interface est plus forte aux basses qu'aux hautes fréquences (voir chapitre III). Les basses fréquences marquent donc profondément le récepteur et le temps d'effacement de celles-ci est plus long. Si l'on veut augmenter la cadence d'image, il faut par conséquent essayer d'éviter que le récepteur fonctionne avec ces basses fréquences. Une solution pour résoudre ce problème est de coder l'interface liquide-liquide à l'aide d'une grille, de telle sorte que toutes les fréquences de l'image (et en particulier ses basses fréquences) soient translatées de part et d'autre de la fréquence de la grille.

3) Amélioration de la maniabilité de l'appareil

La réalisation d'un prototype avec la SOPELEM (voir chapitre VI), a permis de poursuivre l'étude dans de meilleures conditions d'expérimentation : cuves parfaitement étanches, objectif infrarouge de qualité, éclairage de la couche sensible par fibre optique, présentation maniable et compacte du dispositif. Elle a montré, par ailleurs, que l'appareil s'est trouvé extrêmement sensible aux variations de température ambiante, et que son temps de mise en oeuvre (1/2 heure) est trop long. Il apparait par conséquent nécessaire de thermostater l'appareil à ± 2°C, afin de ne pas altérer l'image observée et rendre l'appareil indépendant aux variations de la température extérieure.

Un essai comparatif entre le pyricon de Thomson-CSF et le prototype a prouvé la meilleure sensibilité thermique de l'effet Marangoni sur celui de la pyroélectricité. Cependant, les conditions de maniabilité et de mise en oeuvre rendent actuellement encore, l'imageur à interface liquide-liquide peu commode à utiliser. Un effort est à faire dans cette voie.

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE VI

1) Sur l'infrarouge en général

. J.M. Lloyd "Thermal Imaging Systems"
1975 - Plenum Press -

. La termographie infrarouge
Gilbert Gaussorgues
Technique et Documentation 1981

. Essentials of Modern Physics Applied of the Study of the Infrared
A. Hadni
Pergamon Press 1967

2) Sur la théorie de l'imagerie infrarouge

. Classification and analysis of Image Forming Systems
Proceedings of the IRE
W.K. Weike
Vol. 47, n° 9, 1959

. C. Hilsum, W.R. Harding Infrared Physics
Tome 1, n° 1, p. 67, 1961

. P. Bozec
Revue d'Optique
Tome 47, n° 3, p. 97, 1968

. F. Pointeau
Infrared Physics
Vol. 12, pp. 137-141, 1972
Vol. 14, pp. 9 - 15, 1974

3) Sur les instruments d'imagerie thermique

a) Pyricon
Documentation technique Thomson-CSF

b) AGA
Documentation technique (AGA systems IR)

c) The thermosensitive phosphore imaging system
F. Urbach, N.R. Nail, D. Pearlman
Josa Vol. 39, pp. 1011-1019, 1949

d) The absorption edge image converter
. D.C. Northrop. Services Electronics Res. Lab.
Baldock Herts Eng. July 1953

. W.R. Harding, C. Hilsum, D.C. Northrop
Nature, Vol. 181, p. 691-693, 1958

. C. Hilsum, W.R. Harding
Infrared Physics, Vol 1, p. 67-93, 1961

. P. Bozec
Revue d'Optique
Tome 47, n° 3, pp. 97-117, 1968

. F. Pointeau
Infrared Physics, Vol. 12, pp. 137-141, 1972

e) Cristaux liquides
. Thermal Radiography Utilizing Liquid Crystal
R.D. Ennulat, J.L. Fergason
Molecular Crystals and Liquids Crystals, Vol 13, pp. 149-164, 1971

. Infrared Video camera at 10 µm
Y.V. André, J.P. Chambaret, M.A. Franco, B.S. Prade
Applied Optics, Vol. 18, n° 15, 1979.

f) Evaporographe

. M. Czerny, Physik 53, p. 1, 1929

. M. Czerny et Mollet, Zeitschrift für technishe Physik, 18, p. 582, 1937

. Robinson et Al, JOSA, 47, p. 340, 1957

. G.W. Mc Daniel et D.Z. Robinson
Thermal Imaging by means of the Evaporograph.
Appl. Opt. 1, pp. 311-324, May 1962

. V.N. Sintsov "Evaporographic Image Quality"
Appl. Opt. 6, pp. 1851-1854, 1967

. Mlle Taquet - Nouv. Revue d'Optique Appl.
Tome 1, n° 1, 1970

. M. J.C. Loulergue - Nouv. Revue d'Optique Appl.
Tome 3, n° 2, 1972

g) Effet Marangoni

. E. Heintz Journal Phys. rad., 10, 293 et 336, 1946

. Gretag Panicon, F. Mast, U. La Roche
Int. Proc. Int. Elect. Optical Design, Brighton, 1971.

h) Variation thermique de l'indice de réfraction

. Ulmer Infrared Physics

. J.C. Loulergue et G. Roger - Rapport Interne I.O.T.A.

. G. Roger, Thêse C.N.A.M., 22 juin 1977

CHAPITRE VII

Conclusion Générale

Le travail présenté ici a eu pour objet l'étude théorique du comportement de l'interface libre et de l'interface liquide-liquide d'un fluide mince soumis à un échauffement non uniforme. La théorie et les expériences ont montré que la forte réponse d'une interface de faible tension superficielle, sous l'action d'un faible rayonnement absorbé, pouvait être utilisée dans la réalisation d'un appareil, destiné à convertir une image infrarouge en une image visible.

Une meilleur compréhension du mécanisme de la déformation de l'interface d'une fluide convectant, la maîtrise des paramètres physico-chimiques impliqués dans le mécanisme de la déformation et enfin, la mise en oeuvre technique du principe de base pour aboutir à la réalisation d'un appareil ont été les étapes nécessaires pour atteindre le but visé.

Le mécanisme de la déformation de la surface libre d'un fluide mince convectant comprend deux parties :

- la première concerne le sens de la déformation

- la deuxième établit la grandeur de cette déformation.

Le sens de la déformation de la surface libre, par rapport au flux convectif ascendant, dépend de la compétition entre deux forces : la force d'Archimède et la force de Marangoni. Nous avons montré que la variation thermique de deux paramètres physiques $\delta\alpha$ et $\delta\rho$ interviennent dans les conditions d'équilibre de la surface libre. Ils apparaissent sous la forme du rapport $\frac{\delta\alpha}{g\delta\rho}$. Celui-ci a les dimensions d'une longueur au carré. Il a une signification physique comparable à celle de la "longueur capillaire mécanique" en hydrostatique. Elle a été appelée "longueur capillaire thermique" du fluide. Le sens de la déformation de la surface libre d'un fluide soumis à des forces d'Archimède et de Marangoni est déterminé par cette seule quantité :

* Si la "longueur capillaire thermique" du fluide est grande devant sa hauteur, on peut faire abstraction du champ de pesanteur pour déterminer le sens de la déformation. On observe un creux à la verticale du flux ascendant.

* Si la "longueur capillaire thermique" du fluide est faible devant sa hauteur, on pourra au contraire faire abstraction des forces en surface pour déterminer le sens de la déformation. On observe une bosse à la verticale du

../..

flux ascendant. Le cas intermédiaire est celui ou la hauteur du fluide est égale à sa "longueur capillaire thermique". Dans ces conditions bien que le fluide convecte, la surface libre reste plane. Les forces ont la même intensité. Leurs effets opposés sur la surface libre s'annulent. Cette théorie a été vérifiée récemment par P. CERISIER et J. PANTALONI.

Nous avons montré également que l'amplitude de la déformation de la surface libre dépend de la compétition entre deux forces : la force de pesanteur et la force capillaire. Les paramètres physiques α et ρ figurent dans les conditions d'équilibre de la surface libre, sous la forme du rapport $\frac{\alpha}{\rho g}$ appelé "longueur capillarie mécanique". L'amplitude de la déformation de la surface libre est déterminée par cette seule quantité :

* si la longueur capillaire mécanique du fluide est grande devant sa hauteur, l'amplitude de la déformation est essentiellement gouvernée par les forces capillaires.

* si la longueur capillaire mécanique du fluide est petite devant sa hauteur, l'amplitude de la déformation est essentiellement gouvernée par les forces de gravité.

. Le cas intermédiaire est celui ou la longueur capillaire mécanique est égale à la hauteur du fluide. Dans ces conditions, l'amplitude de la déformation est commandée par des forces capillaro-gravitationnelles.

En conclusion, l'étude théorique a montré que lorsqu'un fluide est soumis à un faible échauffement, sa surface libre acquiert une importante déformation si :

- la convection du fluide est principalement gouvernée par les forces de Marangoni ($|\vec{\nabla}\alpha_1|$).

- la déformation est principalement commandée par les forces capillaires (α_1).

Dans ces conditions, il est nécessaire que le fluide soit mince ($h_1 < 100$ µm) et l'amplitude $\overline{\xi}_1$ de la déformation s'exprime alors très

../..

simplement. Elle est égale à :

$$|\bar{\xi}_1| \propto \frac{|\vec{\nabla}\alpha_1|}{\alpha_1} \frac{1}{k^3 h_1} \qquad \text{avec} \qquad k = \frac{2\pi}{p} \qquad \text{et} \qquad p \gg h_1$$

Noûs avons montré que l'on peut amplifier la déformation de la surface libre du fluide si la surface inférieure du film est une interface liquide-liquide. Dans ces conditions la modulation de cette interface reproduit (à un déphasage de π près) celle de la surface libre, avec une amplitude amplifiée si on utilise un jeu de liquides tel que la différence $(\rho_2 - \rho_1)$ entre les masses volumiques et la tension interfaciale α_{12} sont les plus faibles possibles. Alors, la réponse $(\bar{\xi}_{12})$ de l'interface liquide-liquide peut-être rendue beaucoup plus grande que celle $(\bar{\xi}_1)$ de l'interface liquide-air :

$$|\bar{\xi}_{12}| \propto \frac{\rho_1}{\rho_2 - \rho_1} |\bar{\xi}_1| \qquad \text{pour } h_1 \ll p$$

et

$$|\bar{\xi}_{12}| \propto \frac{\alpha_1}{\alpha_{12}} |\bar{\xi}_1| \qquad \text{pour } h_1 \gg p$$

avec $\frac{\rho_1}{\rho_2 - \rho_1}$ et $\frac{\alpha_1}{\alpha_{12}} \gg 1$; p le pas de la perturbation thermique et h_1 l'épaisseur du liquide supérieur.

Nous avons montré également que les conditions précédentes peuvent être réunies si on mélange deux (ou plus) liquides partiellement miscibles. Il est possible en effet d'obtenir de cette façon en même temps :

* une interface liquide-liquide de faible tension interfaciale ($\alpha_{12} < 1$ dyne/cm).
* une couche liquide supérieure de faible épaisseur ($h_1 \leq 100$ µm).
* un faible écart entre les masses volumiques ($\rho_2 - \rho_1 \leq 0{,}4$ g cm^{-3}).

Afin de faciliter la détection optique des déformations de l'interface liquide-liquide, on a recherché à mélanger des liquides transparents avec des indices de réfraction très différents. Notre meilleur choix s'est porté sur l

../..

deux mélanges suivants :

- le mélange binaire : Bromonaphtalène, huile aux silicones de viscosité 3 cst.

- le mélange ternaire : Bromonaphtalène, Iodonaphtalène, huile aux silicones (0,65 cst).

Le diagramme de phase du mélange binaire a été déterminé et l'équation de la courbe de coexistence du mélange en a été déduite. La tension interfaciale a été trouvée être égale à 0,8 dyne/cm dans un large domaine de température. Le diagramme de coexistence des phases pour le mélange ternaire a été déterminé pour les températures de 20° et 25°. Il a été montré que l'apport de 8 % en poids de Iodonaphtalène dans le mélange binaire constitué par du Bromonaphtalène et de l'huile 0,65 cst, (monophasé au delà de 21°C) permettait d'obtenir pour la même température un système diphasique avec une tension interfaciale de l'ordre de 0,03 dyne/cm à 21°C. Ce mélange ternaire a permis d'augmenter d'un facteur deux le rapport d'amplification entre les amplitudes.

L'interface liquide-liquide est un objet de phase. La visualisation de sa modulation a été faite par ombroscopie. La différence d'indice de réfraction entre les solutions étant respectivement de 0,23 et 0,09 à 20°C pour les mélanges binaire et ternaire, une réflexion totale sur l'interface liquide-liquide pour une lumière visible a été faite. Les performances de la méthode ont été étudiées par diffraction. La répartition dans les différents ordres, de l'intensité de la lumière diffractée en fonction du pas de la modulation a montré que :

- L'amplitude de la modulation est faible ($\bar{\xi}_{12} \ll h_1$) ce qui correspond précisément à l'approximation du calcul théorique.

. L'amplitude de l'interface augmente avec le pas de la modulation, pour un niveau d'entrée constant. L'aspect de "l'image" de la mire de phase observée par ombroscopie dépend de la distance à l'interface de l'écran d'observation, et du pas de la modulation. Si l'amplitude de la modulation de l'interface est faible ($\bar{\xi}_{12} < 0,1$ µm) l'image est semblable à l'objet, même si la distance de l'écran à l'interface est supérieure à un mètre. Son contraste est faible en général. Il existe alors une relation linéaire entre la répartition d'amplitude de l'objet infrarouge et celle de l'image observée.

Si l'amplitude de la modulation est grande ($\bar{\xi}_{12} > 0{,}1$ µm), l'aspect de l'image dépend de la position de l'écran : si l'écran est prêt - quelques centimètres - il y a une ressemblance entre l'image et l'objet ; il existe une relation linéaire entre la répartition d'intensité dans l'image et la phase de la mire de phase ; le contraste est élevé en général ; si l'écran est trop loin, l'apparition des harmoniques d'ordres supérieurs modifie l'image de l'objet. L'image n'est plus conforme à l'objet.

La réponse donnée par l'appareil n'est pas identique pour toutes les fréquences spatiales contenues dans l'objet observé : les basses fréquences apparaitront au détriment des hautes fréquences de l'objet. Nous avons choisit une distance d'observation comprise entre 10 cm et 20 cm, pour un niveau d'entrée correspondant à l'émission des corps à la température ambiante.

Nous avons montré la faisabilité d'un transformateur d'image infrarouge à interface liquide-liquide. La réalisation d'un prototype industriel avec la SOPELEM, dans le cadre d'un contrat d'aide à l'innovation accordé par l'ANVAR, à permis de poursuivre l'étude expérimentale dans de meilleures conditions : cuves parfaitement étanches, objectif IR de bonne qualité, stabilité mécanique du montage, amélioration de la maniabilité du dispositif etc...

Les résultats acquis avec l'appareil utilisant le meilleur mélange (meilleur ternaire) sont les suivants :

1) Résolution thermique : Elle a été estimée à environ 0,5°C, pour un objet à température ambiante, émettant comme un corps noir. Ceci est remarquable, compte tenu de la simplicité du dispositif. La comparaison de ce résultat avec ceux obtenus par d'autres appareils du même type montre que la modulation d'une interface liquide-liquide par des forces de Marangoni est un phénomène thermique extrèmement sensible à la chaleur. Une meilleure exploitation de cet effet permettrait de se rapprocher de sa limite fondamentale.

2) Résolution spatiale : Elle est de 3 paires de ligne par millimètre (3 p.l. mm^{-1}) pour un niveau d'entrée correspondant à un écart de 25°C entre la mire et le fond, tous deux ayant la même émissivité, égale à 1. Par

../..

comparaison le Pyricon (Thomson CSF) a une résolution de 5 p.l. mm^{-1}. Une épaisseur de la couche supérieure plus faible et une autre méthode de visualisation permettraient d'augmenter la résolution spatiale.

3) Constante de temps : Typiquement pour un niveau d'entrée de 10°C, elle est de 5 images par seconde pour une fréquence spatiale de 0,5 pl mm^{-1} et de 2 images par seconde pour 1 pl mm^{-1} (voir annexe III). Par comparaison le Pyricon fonctionne à la cadence image de la télévision, c'est à dire 25 images par seconde. Ce sont les basses fréquences spatiales contenues dans l'objet qui sont responsables du temps de réponse de l'interface. Elles déforment profondément l'interface liquide-liquide. Le codage de l'image infrarouge permettrait de s'affranchir de cet inconvénient et d'augmenter la vitesse.

Il est bien connu également que la tension interfaciale n'est pas seulement sensible qu'à la température, mais aussi à l'adsorption. Ainsi, l'usage de la réflexion totale sur l'interface pourrait être mise à profit pour révéler avec une grande sensibilité un effet de surface, lié par exemple à une instabilité chimique, indépendamment des effets de volume du milieu.

ANNEXE I

ETUDE DE L'INFLUENCE DE L'ABSORBANT SUR LA SENSIBILITE DE L'EVAPOROGRAPHE

Nouv. Rev. d'Optique appliquée, 1972, 3, nº 2, pp. 95-102

INSTITUT D'OPTIQUE. LABORATOIRE D'OPTIQUE INSTRUMENTALE
Bâtiment 503, Faculté des Sciences, F 91-Orsay

ÉTUDE DE L'INFLUENCE DE L'ABSORBANT SUR LA SENSIBILITÉ DE L'ÉVAPOROGRAPHE (*)

par

Jean-Claude LOULERGUE

MOTS CLÉS :
Absorbant
Evaporographe

KEY WORDS :
Absorbant
Evaporograph

RÉSUMÉ

Nous avons étudié et comparé expérimentalement, les performances d'un évaporographe, suivant la nature de l'absorbant infrarouge utilisé.

Une étude photométrique du récepteur, montre, que le meilleur contraste des images évaporographiques est obtenu avec un absorbant du type noir métallique.

Des clichés évaporographiques en couleurs sont présentés.

INTRODUCTION

La visualisation des images infrarouges, par des détecteurs thermiques étendus, permet de concevoir des appareils plus simples, que les caméras infrarouges, à balayage optico-mécanique, qui sont décrites, par exemple, dans la référence [1].

De ce point de vue, l'évaporographe est un convertisseur d'images infrarouges, de sensibilité thermique comparable. Cet appareil, dont le principe remonte aux travaux de J. Herschel (1840) a été récemment étudié par G. W. Mc Daniel et D. Z. Robinson [2], V. N. Sintsov [3], et M^lle^ Taquet [4].

Les résultats de leurs travaux, montre des images évaporographiques qui diffèrent en contraste, selon qu'ils utilisent comme absorbants, un dépôt de noir d'or (Robinson, Sintsov), voir figure 1, ou bien une couche mince d'or métallique (M^lle^ Taquet), voir figure 2.

On se propose d'étudier les raisons de la différence des rendus des images évaporographiques, suivant la nature des absorbants utilisés.

Nous rappellerons d'abord, le fonctionnement de l'évaporographe, et nous calculerons les sensibilités théoriques propres à chaque type de détecteur.

Nous décrirons ensuite la réalisation et le contrôle de dépôts absorbants au voisinage de 10 µm. La dernière partie de cet article sera consacrée à l'interprétation de la visualisation des images, qui permettra d'expliquer l'aspect chromatique différent des clichés.

ÉVALUATION DE LA SENSIBILITÉ THERMIQUE DE L'ÉVAPOROGRAPHE

1. — Bilan énergétique

L'énergie totale admise par le système optique, est en partie absorbée, le reste étant transmis ou réfléchi. Soit E_λ l'éclairement spectral, arrivant sur le détecteur, pendant l'intervalle de temps Δt et $a_1(\lambda)$ le facteur d'absorption spectral du récepteur. L'énergie absorbée

(*) Thèse de troisième cycle, soutenue le 29 janvier 1971 à la Faculté des Sciences d'Orsay.

REMERCIEMENTS : J'adresse de vifs remerciements à M. Jacques Simon, Maître de Recherche, Chef du Service Optique Instrumentale, qui a dirigé mon travail et à M. J. F. Caron pour l'aide efficace apportée dans la réalisation de l'instrument, et sa participation aux mesures.

par unité de surface Q', est égale à :

$$Q' = \Delta t \int_0^\infty a_1(\lambda)\, E_\lambda \, d\lambda =$$

$$= Q_1 + Q_2 + Q_3 + Q_4 + Q_5 + Q_6 + Q_7$$

où Q_1, Q_2, Q_3 représentent les énergies nécessaires pour chauffer l'absorbant, le support, et la couche sensible.

Q_4, Q_5, Q_7, sont les énergies perdues par conduction, par rayonnement, et par convection.

Q_6, est l'énergie utile pour provoquer l'évaporation.

On négligera, dans la suite, les pertes par conduction dans le plan du récepteur.

2. — Expression de ces différents facteurs

— *Echauffement du récepteur.*

$$Q_1 + Q_2 + Q_3 = (\rho_1 e_1 c_1 + \rho_0 e_0 c_0 + \rho_2 e_2 c_2)\, \Delta T'$$

ρ masse volumique, e épaisseur, c chaleur spécifique, les indices 0, 1, 2, se rapportant respectivement au support, à l'absorbant, à la couche d'huile.

$\Delta T'$ est l'élévation de température du récepteur, à la température de fonctionnement T'.

— *Différence des pertes par rayonnement.*

$$Q_5 = 4(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\, \sigma T'^3\, \Delta T'\, \Delta t$$

ε_1, ε_2 sont les facteurs d'émissivité globaux des deux faces du récepteur. σ la constante de Stefan.

Il faut remarquer que l'expression a été calculée, dans l'approximation : $\Delta T' \ll T'$, hypothèse qui sera justifiée plus loin.

— *Evaporation de l'huile.*

$$Q_6 = L\, \Delta e_2\, \rho_2$$

L chaleur latente de vaporisation de l'huile.

Δe_2 épaisseur évaporée pendant le temps Δt.

— *Pertes par convection.*

$$Q_7 = K\, \Delta T'\, \Delta t$$

K est une constante qui dépend de la nature du gaz résiduel.

La plupart des énergies mises en cause, sont proportionnelles à $\Delta T'$. Il est nécessaire de connaître la valeur de $\Delta T'$, pour les calculer.

3. — Calcul de l'élévation de température $\Delta T'$ du récepteur

La théorie cinétique des gaz permet d'exprimer la quantité de liquide Δm, évaporée, lorsque la température T' du film d'huile s'élève de $\Delta T'$, à la pression p.

$$(1) \qquad \Delta m = \left(\frac{M}{2\pi R}\right)^{1/2} \Delta T' \frac{d}{dT'} \left(\frac{p}{\sqrt{T'}}\right)$$

avec M poids moléculaire, R constante des gaz parfaits.

La dérivée s'obtient par l'utilisation de la relation de Clapeyron-Clausius. Le calcul fait et porté dans (1) permet d'écrire l'équation (2) :

$$(2) \qquad \Delta m = \left(\frac{M}{2\pi R}\right)^{1/2} \Delta T'\, p\, \frac{2LM - RT'}{2\, RT'^{5/2}}.$$

L'énergie Q_6 nécessaire pour évaporer Δe_2, pendant l'intervalle de temps Δt, est égale au produit de la masse évaporée, par la chaleur latente.

$$(3) \qquad Q_6 = \Delta m . L . \Delta t = L\, \Delta e_2\, \rho_2 .$$

La relation (2) portée dans (3) permet de tirer la valeur de $\Delta T'$ on a :

$$\Delta T' = \frac{\rho_2\, \Delta e_2\, 2\, RT'^{5/2} (2\pi R)^{1/2}}{M^{1/2}\, p(2LM - RT')\, \Delta t}.$$

— *Données numériques pour le calcul de* $\Delta T'$.

$\rho_2 = 0{,}9$ g/cm^3
$R = 8{,}314.10^7$ erg dg^{-1} mole^{-1}
$T' = 300$ °K
$p = 3.10^{-2}$ mm de Hg à 300 °K
$M = 538$ g
$L = 24{,}7$ cal g^{-1}

Différence d'épaisseur minimum observable :

— Si le récepteur est avec du noir d'or $\Delta e_2 = 160$ Å.

— Si le récepteur est avec de l'or métallique $\Delta e_2 = 300$ Å.

Les calculs ont donné :

$\Delta T' = 0{,}007$ °C pour une cible avec noir d'or,
$\Delta T' = 0{,}012$ °C pour une cible avec or métallique.

Ces grandeurs représentent l'écart minimum de température décelable sur le récepteur, par l'observateur.

4. — Tableau des énergies minimales, mises en jeu dans l'évaporographe pour détecter la plus petite différence de température

$Q.10^{-6}$ cal cm^{-2}	Q_1	Q_2	Q_3	Q_5	Q_6	Q_7	$\Delta T'$ °C
Noir d'or...	0,011 5	0,039	0,020 4	15,81	37,74	18,36	7.10^{-3}
Or métallique	0,004 4	0,027	0,036	22,74	66,67	32,40	12.10^{-3}

On peut remarquer que la valeur de Q_6, énergie dissipée pour provoquer l'évaporation de l'huile, est la plus importante, devant par ordre décroissant, l'énergie Q_7 perdue par convection, et l'énergie Q_5, perdue par rayonnement. Les autres facteurs sont négligeables.

Il faudrait pour diminuer Q_6, travailler avec une huile ayant une chaleur latente, et une masse volumique plus faible, ou bien encore utiliser un système de lecture du récepteur plus sensible. On augmenterait,

en même temps, la cadence d'images, et leurs qualités puisque l'on travaillerait avec des différences d'épaisseurs beaucoup plus petites.

5. — Sensibilité thermique

L'usage s'est établi, de caractériser l'aptitude des instruments d'observation en infrarouge à déceler de faibles contrastes, par la plus petite différence de température observable sur l'objet. (On sous-entend « Objet noir à 300 °K ».)

La théorie de l'imagerie thermique, appliquée à l'évaporographe (2) permet de calculer cet écart minimum. On a :

$$\Delta T = \frac{4(\varepsilon_1 + \varepsilon_2)\,\sigma T'^3\,\Delta t\,\Delta T' + Q_6 + Q_7}{4\sin^2 \alpha t_a\, a_1\, \varepsilon_0\, \sigma T^3\, \Delta t}.$$

Calcul de ΔT pour un corps noir à 300 °K.

$\varepsilon_1 = \varepsilon_2 = 0{,}8$;
$\sigma = 1{,}357.10^{-12}$ cal cm^{-2} s^{-1} °C^{-4} ;
$T' \simeq T = 300$ °K ;
Q_6 et Q_7 sont données dans le tableau précédent.
$\sin \alpha = 0{,}50$ pour un système optique ouvert à $f/1$;
$t_a = 0{,}70$ transmission de l'air et de l'optique en sel pour le rayonnement d'un corps noir à 300 °K ;
$a_1 = 0{,}80$ pour le noir d'or et 0,50 pour l'or métallique ;
$\varepsilon_0 = 1$;
$\Delta t = 10$ s.

On trouve selon l'absorbant utilisé :

$\Delta T = 0{,}7$ °C avec le noir d'or,
$\Delta T = 1{,}5$ °C avec l'or métallique.

L'évaporographe doté d'une couche absorbante du type noir d'or, a environ une résolution thermique deux fois meilleure. Nous verrons d'après les clichés présentés que ce résultat est vérifié.

ÉTUDE ET RÉALISATION DE DÉPÔTS ABSORBANTS DANS L'INFRAROUGE

Nous avons réalisé, afin de les comparer, des dépôts de noir d'or et d'or métallique, fortement absorbants au voisinage de 10 μm.

1. — Préparation des dépôts absorbants

a) *L'or métallique.* — L'usage de métaux bons conducteurs, permet d'obtenir des couches absorbantes dans l'infrarouge. Parmi eux, l'or est le métal qui convient le mieux, pour réaliser des couches avec une masse thermique très faible :

($\rho ec = 36.10^{-8}$ cal °C^{-1} cm^{-2} avec $e \simeq 60$ Å).

Dans ce cas, l'épaisseur à déposer est extrêmement critique, si l'on veut obtenir l'absorption maximum. Nous allons décrire le procédé, qui nous permet de contrôler, la fabrication en cours de réalisation, des lames à fortes absorptions.

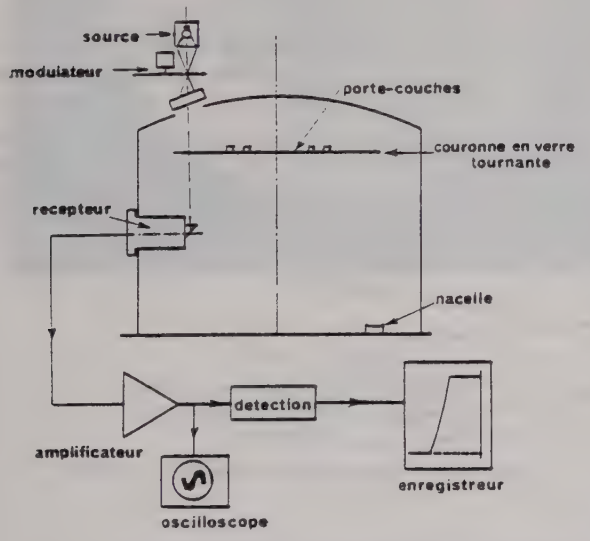


FIG. 3. — *Dispositif de mesures, en cours d'évaporation, des couches métalliques d'or.*

FIG. 3. — *Apparatus for the measuring, during the evaporation, of the gold layers.*

Les membranes de collodion sont disposées au centre d'une couronne en verre, le long d'un petit cercle. L'ensemble tourne autour de l'axe de symétrie de la cloche à vide, voir figure 3. Cette disposition, assure au niveau des substrats, un dépôt uniforme de la vapeur métallique. Le contrôle se fait sur le support, par un récepteur qui mesure le flux transmis $\mathcal{T}$ à travers la couronne en verre, d'une source lumineuse. A tout instant, il existe une correspondance univoque entre la grandeur $\mathcal{T}$ mesurée et l'absorption des couches d'or. Le signal est enregistré au cours de l'évaporation, ce qui permet d'interrompre le dépôt, à la valeur désirée.

On réalise ainsi des dépôts d'or métallique, sur membranes de collodion, ayant une absorption infrarouge importante ($A \sim 45$ % pour un corps noir à 323 °K), approchant la valeur maximum théorique [5].

b) *Le noir d'or.* — Lorsqu'un métal est vaporisé dans le vide partiel d'un gaz inerte — de 0,5 à 20 mm de Hg — le nuage de particules formé, peut sous certaines conditions, être condensé, pour donner des dépôts noirs, ayant une grande absorption dans l'infrarouge. Le noir métallique retenu est le noir d'or : il absorbe environ 80 % du rayonnement incident, avec une masse thermique faible ($1{,}7.10^{-6}$ cal °C^{-1} cm^{-2} [6]).

Nous rappelons à l'annexe A, le procédé de fabrication de telles couches noires, étudié par Louis Harris [6].

2. — Contrôle de l'absorption infrarouge des dépôts

On mesure, à l'aide d'un montage simple [7], la transmission T, et la réflexion R des dépôts, pour le rayonnement d'un corps noir à 323 °K, dans l'atmosphère. On en déduit, l'absorption globale A des

couches, correspondant à l'absorption moyenne d'un échantillon semblable, pour la région spectrale comprise entre 2 µm et 15 µm. Ce dispositif suppose des membranes planes et non diffusantes. Or les récepteurs avec or métallique sont très minces (< 500 Å) donc flexibles, et ceux avec le noir d'or sont légèrement diffusants ($R_d \sim 1\ \%$) ; par conséquent la détermination de l'absorption globale A des récepteurs n'est qu'approchée ($\sim 5\ \%$).

3. — Comparaison entre les deux absorbants

La structure et les propriétés optiques des récepteurs sans couche sensible, c'est-à-dire, comprenant seulement le support et l'absorbant diffèrent, nous allons le voir, profondément.

L'or métallique est une couche très mince ($\sim$ 60 Å), vraisemblablement lacunaire. Elle est absorbante, pour une longueur d'onde donnée, avec une épaisseur bien déterminée, donc difficile à réaliser. Elle forme avec le support, une pellicule double, qui présente une teinte d'interférence variable suivant les épaisseurs de l'or et du collodion. Ainsi, la combinaison d'une couche d'or absorbante, avec une membrane de 400 Å d'épaisseur donne le pourpre, teinte sensible pour l'œil : une très faible variation d'épaisseur de la couche sensible, changera la couleur du récepteur.

On dispose ainsi, d'un « équipage thermique » extrêmement faible, adapté pour la vision des changements de couleurs.

Le noir d'or est une couche absorbante noire, d'aspect poreux, à réflexion sélective sous incidence élevée. Il est associé avec des membranes de collodion, de couleur jaune, c'est-à-dire ayant une épaisseur de 1 000 Å ; contrairement avec l'or, leur couleur ne dépend pas de la couche absorbante, quel que soit son épaisseur. Une grande absorption infrarouge ($\sim 80\ \%$), demande au moins une épaisseur de 3 µm [8] pour les dépôts. Ils transmettent alors 25 % à 0,55 µm et 16 % à 7 µm, et réfléchissent moins de 2 % du rayonnement incident, pour des longueurs d'ondes inférieures à 15 µm. L'épaisseur importante du noir d'or — 500 fois celle de l'or — peut laisser craindre une masse thermique importante, et une mauvaise résolution des images thermiques.

En fait, le noir d'or est un dépôt pulvérulent, constitué de crystallites d'or, empilées les unes sur les autres, dont les dimensions sont de l'ordre de la centaine d'Angströms, et de densité, 2.10^{-3} plus faible que la densité de l'or pris à l'état massif [6]. Ceci explique sa faible conductibilité thermique, entre 4 et 15.10^{-5} $W\,°C^{-1}\,cm^{-1}$ [3], son efficacité comme absorbant ainsi qu'une masse thermique peu importante.

Etant donné, le contact particulier du noir d'or, sur le support, il aurait été préférable, compte tenu de sa faible diffusion thermique latérale, de joindre la couche sensible, à l'absorbant, le transfert de chaleur étant plus direct. Cette solution, concevable avec une couche d'or, n'est pas possible avec le noir d'or, à cause de sa nature poreuse.

Bien qu'apparemment moins satisfaisant que les couches d'or, pour l'imagerie thermique, le noir d'or, semble présenter, grâce à sa structure très particulière, des qualités comparables.

Nous nous proposons d'examiner maintenant, le processus de visualisation de l'image thermique, pour chacun des récepteurs, comparés précédemment.

ÉTUDE PHOTOMÉTRIQUE DES RÉCEPTEURS ÉVAPOROGRAPHIQUES

L'influence de l'absorbant sur le contraste des images thermiques est mise en évidence, par l'étude photométrique des récepteurs.

1. — Principe des mesures

On mesure l'intensité de la lumière refléchie par les récepteurs, du côté de la couche sensible, sous incidence normale, en fonction de la longueur d'onde, et de l'épaisseur d'huile, voir figure 4.

Les indices de l'huile et du collodion, étant très voisins, nous avons pu simuler, la variation d'épaisseur de la couche sensible, par le dépôt successif, de membranes de collodion, d'épaisseurs connues, sur les récepteurs initiaux.

Les mesures photométriques sur de telles combinaisons de couches minces, ont un caractère particulier, à cause de la flexibilité du support. Nous nous sommes servis pour cela, d'un réflectomètre conçu

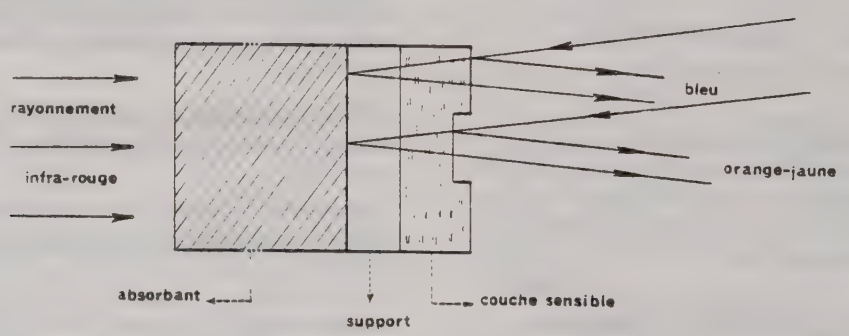


FIG. 4. — *Principe de la détection visuelle de l'image thermique.*

FIG. 4. — *Principle diagram of the visual detection of the thermal image.*

FIG. 1. — *Image évaporographique, d'une main, obtenue avec un récepteur, recouvert de noir d'or.*

FIG. 1. — *Evaporograph image of a hand photographed with a detector, coated with a deposit of gold-black.*

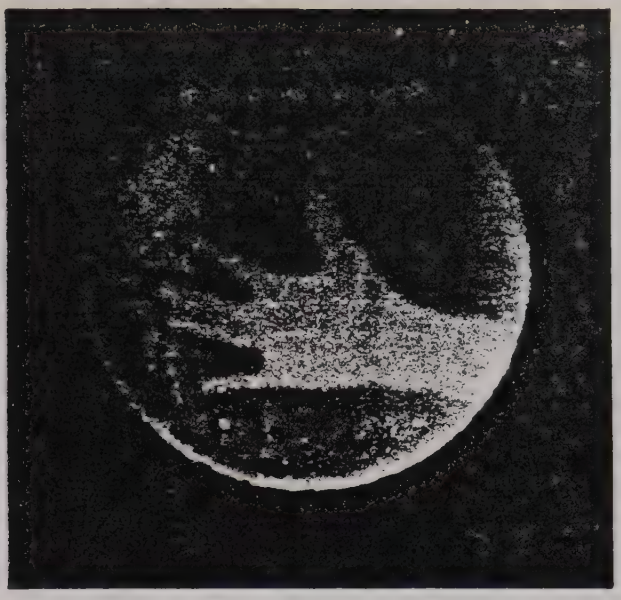


FIG. 2. — *Image évaporographique, d'une main, obtenue avec un récepteur recouvert d'une couche d'or métallique.*

FIG. 2. — *Evaporograph image of a hand photographed with a detector, coated with a thin layer of gold.*

FIG. 7. — *Image évaporographique d'une tête d'homme vue de profil.*

FIG. 7. — *Evaporograph image of a man's head.*

FIG. 8. — *Image évaporographique d'une tête d'homme vue de face.*

FIG. 8. — *Evaporograph image of a man's head.*

PLANCHE I

MASSON ET CIE, *Editeurs, Paris*

au laboratoire [9]. Les résultats obtenus ont les précisions suivantes : ± 0,5 % sur T, et ± 1 % sur R, dans le visible.

2. — Résultats

a) *Récepteur avec noir d'or.* — Les mesures du facteur de réflexion R, pour trois longueurs d'onde, sont représentées par les courbes de la figure 5. Ce facteur de réflexion peut être calculé directement par :

$$R = R_m \sin^2\left(\frac{2\pi ne}{\lambda}\right)$$

avec :

$$R_m = \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 1}\right)^2$$

où n et e représentent l'indice et l'épaisseur du collodion.

On constate, un décalage des courbes en intensité, correspondant à une diminution d'environ 2 % pour les valeurs expérimentales, par rapport aux valeurs calculées. Ceci est dû, à la nature particulière du contact entre le dépôt de noir d'or, et le support. En effet, l'intensité de la lumière réfléchie par la membrane de collodion, diminue légèrement, lorsqu'on lui adjoint par derrière, un dépôt de noir d'or, voir figure 6. Cette propriété des noirs métalliques, permet d'expliquer l'existence d'un phénomène d'interférences à deux ondes, d'amplitudes égales entre les faces antérieures et postérieures du collodion, recouvert de cet absorbant. On obtient ainsi des couleurs pures, ayant un bon contraste, voir figures 7 et 8.

b) *Récepteur avec or métallique.* — Le principe des mesures est identique ; seul l'absorbant a changé. Les résultats sont représentés par les courbes de la figure 9.

On remarque, contrairement au cas précédent :

— que les maxima successifs, pour une longueur d'onde donnée ne sont pas égaux,

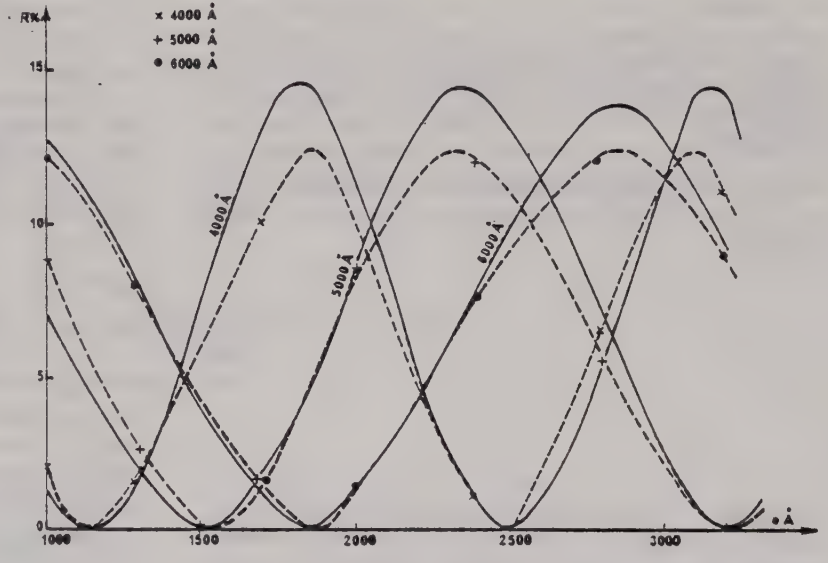
— que le récepteur réfléchi beaucoup plus dans le rouge que dans n'importe quelle autre longueur d'onde. Nous avons tenté de retrouver ces valeurs, en calculant le facteur de réflexion de ce récepteur, en fonction de l'épaisseur de collodion, pour trois longueurs d'ondes. On constate, figure 10 que les courbes théoriques sont différentes. Cela est dû à la structure de la couche d'or métallique qui est granulaire, alors que dans nos calculs nous l'avions supposé plane et

FIG. 5. — *Facteur de réflexion, d'un récepteur, recouvert de noir d'or, en fonction de l'épaisseur « d'huile » pour trois longueurs d'onde.*

——— : valeurs calculées,
- - - - - - : valeurs mesurées.

FIG. 5. — *Calculated and measured reflectance of a detector with gold-black, as a function of the oil thickness.*

——— : calculated reflectance,
- - - - - - : measured reflectance.



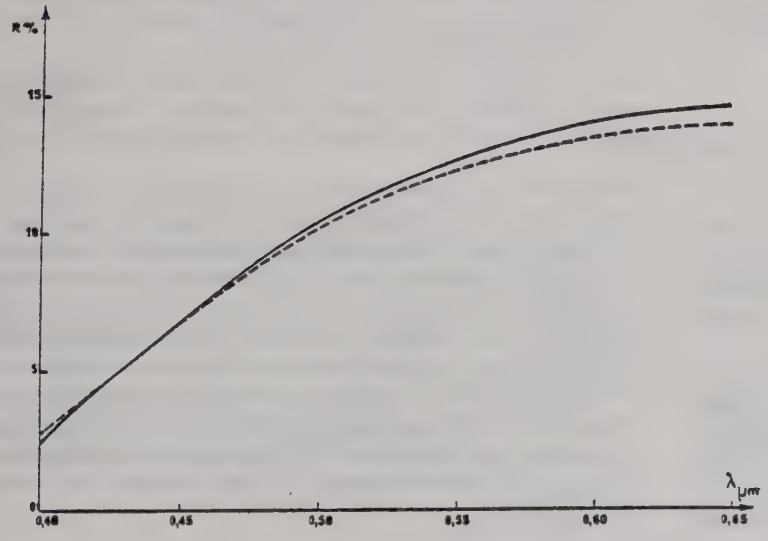


FIG. 6. — *Variation spectrale du facteur de réflexion, d'une membrane de collodion, avec ou sans dépôt de noir d'or sur la face arrière.*

——— : sans dépôt,
- - - - - - : avec dépôt.

FIG. 6. — *Measured spectral reflectance of a thin layer of collodion with or without gold-black.*

——— : without,
- - - - - - : with.

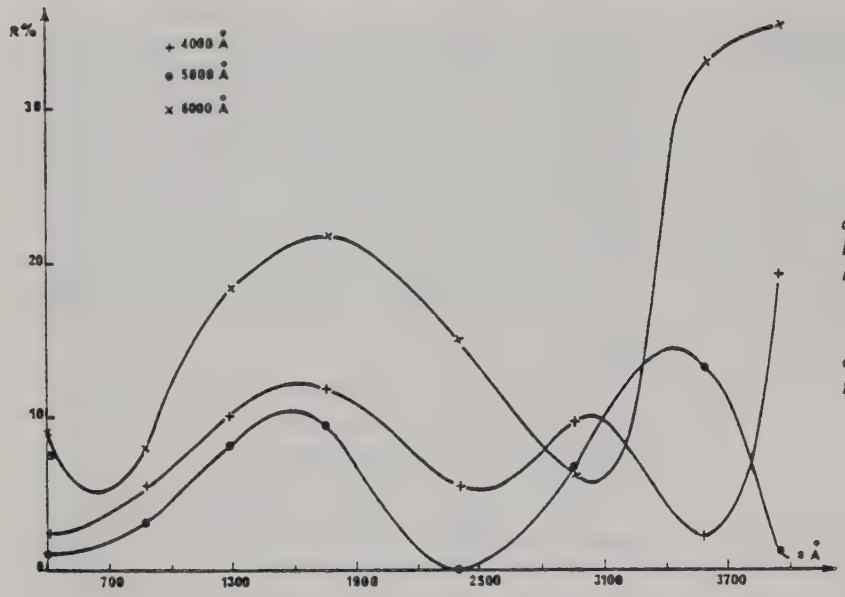


FIG. 9. — *Facteur de réflexion, d'un récepteur avec une couche d'or métallique en fonction de l'épaisseur de la couche « d'huile », pour trois longueurs d'onde.*

FIG. 9. — *Measured reflectance for a detector coated with a layer of gold, as a function of the oil film thickness.*

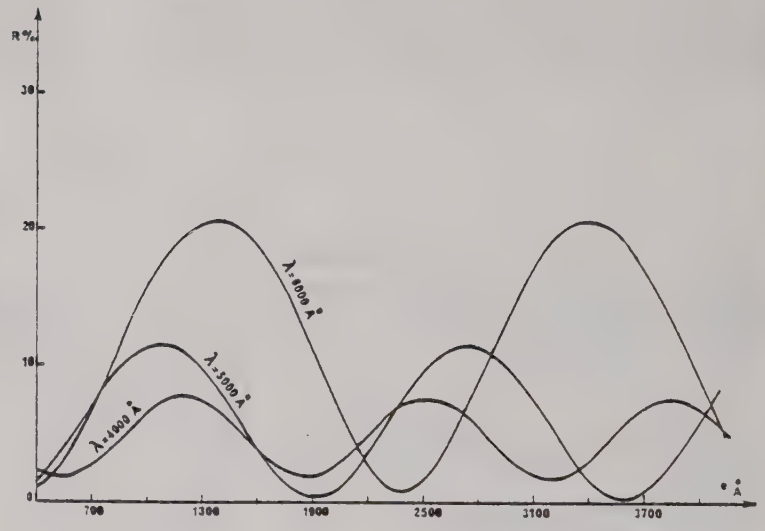


FIG. 10. — *Facteur de réflexion calculé pour un récepteur avec une couche d'or métallique, en fonction de l'épaisseur de la couche « d'huile », pour trois longueurs d'onde.*

FIG. 10. — *Computed reflectance, for a detector coated with a layer of gold, as a function of the oil film thickness.*

homogène. Cependant nous retrouvons un point commun important : une réflexion sélective élevée dans le rouge. Cette propriété explique l'aspect chromatique des clichés obtenus avec un récepteur, recouvert d'or métallique et éclairé en lumière blanche.

Cette sélectivité dans le rouge, réduit la pureté des couleurs et par conséquent le contraste des images évaporographiques, voir figures 1 et 2.

CONCLUSION

La comparaison des images obtenues, avec deux récepteurs différents, a montré le rôle important joué par la couche absorbante, sur la visibilité des images évaporographiques, et par conséquent, sur la sensibilité thermique de l'appareil.

En outre, bien que ces deux absorbants soient très différents, par leurs aspects, leurs propriétés optiques, leurs structures, nous n'avons pas trouvé, de différences significatives, sur la résolution et l'inertie des récepteurs.

L'étude expérimentale, de la visualisation de l'image thermique, pour chacun des récepteurs a expliqué les raisons des rendus des couleurs, des clichés obtenus et laisser prévoir, pour un récepteur utilisant un absorbant, du type noir métallique, une amélioration sensible, par l'emploi d'une source trichromatique au lieu d'une source lumineuse blanche.

Cependant, le choix d'un nouveau système de détection de l'image thermique, beaucoup plus sensible que celui actuellement utilisé, permettrait certainement, d'augmenter énormément, les performances de l'évaporographe.

ANNEXE 1. MÉTHODE DE FABRICATION DES COUCHES DE NOIR D'OR

La réalisation de dépôts absorbant l'infrarouge demande plusieurs précautions :

— L'atmosphère, dans laquelle s'effectue l'évaporation, doit être libre de traces d'oxygène, et de vapeur d'eau, ou tout au moins en très faibles proportions.

— La pression doit avoir une valeur, comprise dans de certaines limites, qui dépendent de la nature du gaz résiduel.

— La vitesse d'évaporation doit être contrôlée.

— Le support, sur lequel vient se condenser le noir métallique doit être « refroidi », pendant l'opération, et se trouver, à une certaine distance du filament, pour assurer une bonne uniformité.

— Enfin la couche doit être recuite pour être stabilisée.

La disposition des pièces pour réaliser la plupart de ces conditions, est représentée par la figure 11.

Un filament de tungstène, de 0,8 mm de diamètre, et 120 mm de long, forme en son milieu, un vé de 45° environ. Un fil d'or pur de 0,4 à 0,5 mm de diamètre, et 60 mm de long, est enroulé intimement au voisinage du sommet. Un autre filament de tungstène sert de guetter, pour brûler les dernières traces d'oxygène dans l'atmosphère résiduelle. Un anneau de verre de 0,7 mm d'épaisseur porte la membrane de collodion ; on refroidit le substrat en plaçant à 0,2 mm de sa face arrière, un bloc cylindrique en cuivre de

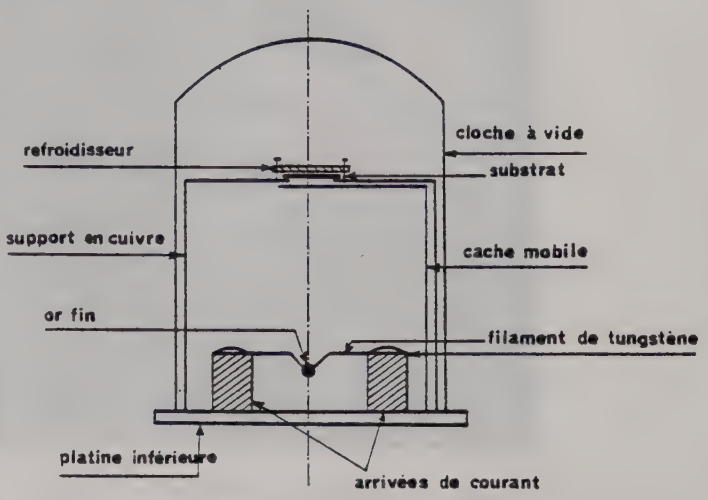


FIG. 11. — *Dispositif de fabrication des dépôts de noir d'or.*

FIG. 11. — *Apparatus for deposition of gold-black.*

3 mm d'épaisseur. On fond l'or sur le filament, à 10^{-5} mm Hg, et on purge, l'atmosphère de la cloche à vide des traces d'oxygène, par des balayages d'hélium. On condense ensuite l'or en atmosphère d'hélium, sous une pression comprise entre 4 et 5 mm de Hg. La vitesse du dépôt est contrôlée par l'intensité passant dans le filament ; l'épaisseur par la durée de la condensation.

ANNEXE 2. INVERSION DE CONTRASTE

On observe en lumière monochromatique, une inversion de contraste de l'image, au cours de son développement par la couche sensible. L'interprétation peut se faire, à l'aide des courbes expérimentales :

— L'évolution de R_i, facteur de réflexion d'un point de l'image de l'objet.

— Et de R_f, facteur de réflexion d'un point de l'image du fond, sur le récepteur est représentée par la figure 12, dans le cas d'une évaporation sur un fond à température plus basse que l'objet.

Quelques instants après l'ouverture du télescope, nous avons $R_i > R_f$; l'image est claire sur fond sombre. Puis R_f décroît, tandis que R_i croît, contrairement aux épaisseurs e_i et e_f correspondantes, de la couche d'huile. R_i après être passé par le maximum de la courbe tend vers R_f, et l'égale ; nous sommes à contraste nul, l'image a disparu. Elle réapparaît ensuite avec un contraste inversé ; le fond est devenu plus clair que l'image ; $R_f > R_i$; un exemple est donné par les photographies de la figure 13.

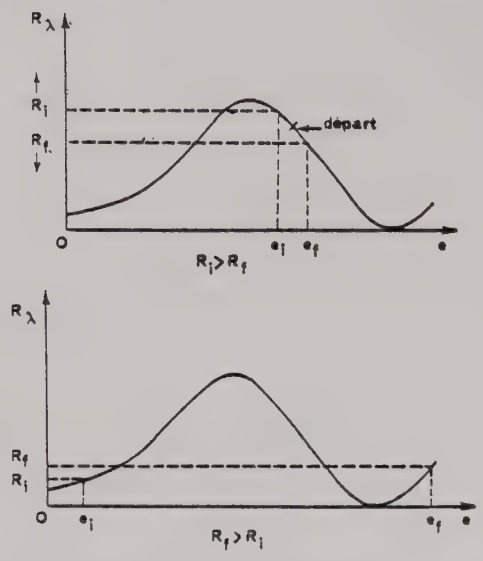


FIG. 12. — *Intensité lumineuse réfléchie dans le vert, par un récepteur recouvert d'or métallique, pendant le développement de l'image thermique par la couche sensible.*

FIG. 12. — *Reflectance at* 0,5 μm, *for a detector coated with a layer of gold, as a function of the oil evaporation process.*

FIG. 13. — *Images évaporographiques d'une main, observée en lumière monochromatique* (0,5 µm).

a) Prise du cliché : 1 seconde après le début de l'évaporation.
b) Prise 5 secondes après *a*).

FIG. 13. — *Evaporograph images of a hand, photographed at* 0,5 µm.

a) Time recording : one second from the beguinning of the evaporation process.
b) Five seconds after *a*).

BIBLIOGRAPHIE

[1] « LA THERMOGRAPHIE INFRAROUGE », *Ingénieurs et Techniciens*, n° 248, 12/1970.
[2] Mc DANIEL (G. W.) et ROBINSON (D. Z.), *Applied Optics*, May 1962.
[3] SINTSOV (V. N.), *Applied Optics*, Vol. 6, n° 11, 11/1967.
[4] Mlle TAQUET, *Nouv. Rev. d'Optique Appl.*, t. 1, n° 1, 1970.
[5] HADLEY (L. N.) et DENNISON (D. M.), J. O. S. A., 37, n° 6, 1947.
[6] HARRIS (Louis), *The Optical properties of metal blacks and carbon blacks, Monograph*, series n° 1, 12/1967.
[7] BOZEC (P.), *Revue d'Optique*, t. 47, n° 3, 3/1968.
[8] BLEVIN (W. R.) et BROWN (W. J.), *Metrologie*, Vol. 2, n° 4, 1966.
[9] POINTEAU (F.), *Thèse Ingénieur-Docteur*, 1/1971.

(Manuscrit reçu le 3 janvier 1972.)

Imprimé en France. — Editions MASSON et Cie
Imprimerie JOUVE, 12, rue de Tournon, Paris 6e

ANNEXE II

UNITED STATES PATENT

June 23, 1981

4,275,302

United States Patent [19]

Imbert et al.

[11] 4,275,302

[45] Jun. 23, 1981

[54] METHOD AND DEVICE FOR CONVERTING THERMAL IMAGES INTO SECONDARY IMAGES, E. G. VISIBLE IMAGES

[75] Inventors: Christian Imbert, Ballancourt; Yves Levy, Malakoff; Jean-Claude Loulergue, Paris, all of France

[73] Assignee: Agence Nationale de Valorisation de la Recherche (ANVAR), Neuilly sur Seine, France

[21] Appl. No.: 78,559

[22] Filed: Sep. 24, 1979

[30] Foreign Application Priority Data

Sep. 29, 1978 [FR] France 78 28041

[51] Int. Cl.³ H01J 31/50; G02F 1/29

[52] U.S. Cl. 250/330; 350/361

[58] Field of Search 250/330, 472, 316.1, 250/474; 350/361

[56] References Cited

U.S. PATENT DOCUMENTS

3,397,313 8/1968 Mast 250/330

3,603,794 9/1970 Mast 250/330

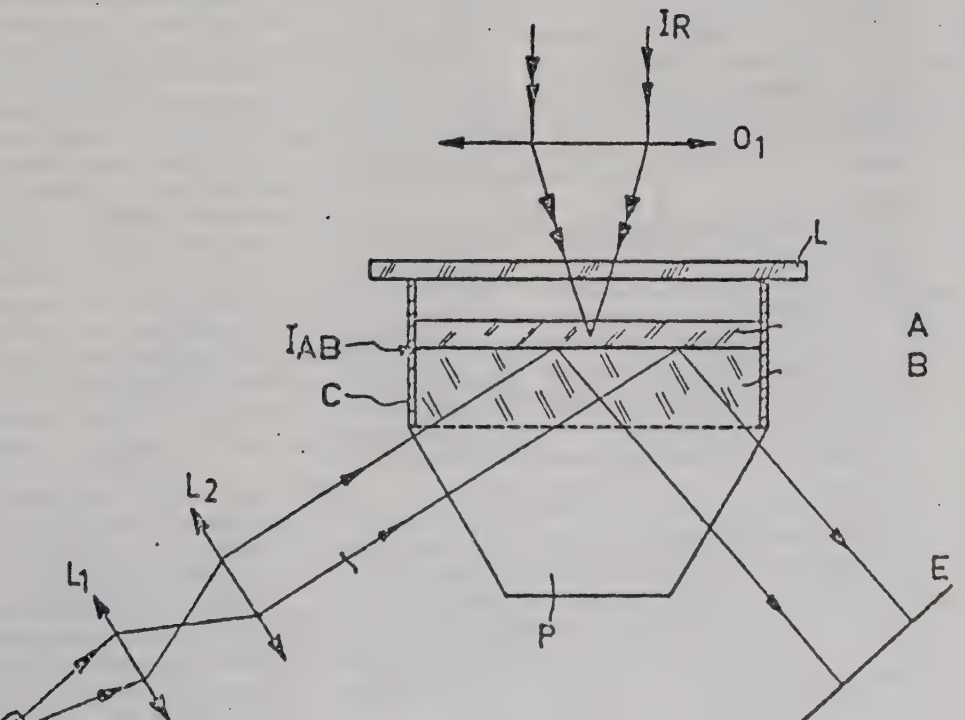
Primary Examiner—Alfred E. Smith

Assistant Examiner—Carolyn E. Fields

[57] ABSTRACT

A converter and method of converting thermal images into secondary images, e.g. visible images. The infrared radiation emitted by an object is focused by an optical system to form a thermal image on the free surface of a thermal radiation absorbing layer to one side of a liquid-liquid interface which has low surface tension and is a mixture of two liquid partially miscible at operating temperature and pressure. To convert the thermal image to a visible a parallel beam of light or a beam of light from a point source in the visible range is directed to the other side of the interface and, depending on the selected indices of the interface liquids and whether a prism is used or not; is either transmitted or reflected. The emerging transmitted or reflected beam is then received on a screen or in a detection system where variations of the optical properties of the emerging beam are observed.

31 Claims, 10 Drawing Figures



METHOD AND DEVICE FOR CONVERTING THERMAL IMAGES INTO SECONDARY IMAGES, E. G. VISIBLE IMAGES

FIELD OF THE INVENTION

The present invention relates to a method for converting thermal images, namely infrared images, into visible images, and a device for carrying out the method.

BACKGROUND OF THE INVENTION

It is well known that any body whose temperature is greater than absolute zero emits radiation in the infrared range the spectral intensity of which depends on the nature of the emitting surface and the absolute temperature of the body. In many military, medical and industrial uses it is desirable to convert infrared radiation into visible light in order to observe bodies and measure their surface temperatures.

There are systems in which the infrared radiation is converted into visible light by means of image amplifiers. However, these systems only use a small part of the infrared spectrum, i.e. near visible light, in the range between 0.8 μm and 1.4 μm. As for bodies at ambient temperature the greater part of their emitted infrared energy is lost since it is located near 10 μm and cannot be utilized in this manner.

Other systems employ the near and remote infrared spectrum between 1 μm and 100 μm, for example, motion-picture camera with a thermocouple, holometer or pyroelectric type thermal detecters. These instruments require about one minute to provide an image. They are therefore incapable of monitoring moving bodies.

There are instruments which monitor moving bodies at a speed close to the standards of conventional television. To achieve such results quantic receivers are employed which must be cooled with liquid helium or liquid oxygen which is a considerable constraint.

In another system which requires about 5–6 seconds to produce a visible image, a liquid is used which is locally condensed or evaporated in greater or lesser amounts depending on the intensity of incident infrared radiation. However, apart from the fact that it needs several seconds to produce an image, which is still too long to observe moving bodies, the system must be reset to observe another image which is at least a one-minute operation even in the hands of an experienced technician.

To enable the monitoring of moving bodies or events in the infrared range, there are some devices which employ a sensitive layer which vary locally in accordance with the radiation intensity. Such local variations are usually deformations of the surface of the sensitive layer. The resulting relief image is used to control a visible light which after being reflected or transmitted by the deformed surface passes through a viewing system, e.g. a Schlieren, phase contrast or holographic system.

The difficulty with such systems lies in the choice of a suitable sensitive layer. Such layers are often of low sensitivity, and/or difficult technically to produce. For example, the part of the fine solid membrane heated by the infrared radiation expands; the neighbouring regions which are not heated or differently heated oppose the expansion of the contour of the first part thereby producing a two-dimensional warping.

It has also been proposed (see French patent No. 1,452,665) an image converter in which the control layer is a thin film of a low viscosity liquid, e.g. a hydrocarbon. The sensitive layer then comprises a thin liquid film which absorbs radiation and heats up locally. There results a variation in density and convection motion is established which may be observed if the liquid contains fine particles in suspension. Under the same conditions the free surface of the liquid deforms and produces an infrared relief image located in the liquid. Finally, a sensitive layer may be formed as a semi-conductor. In this case it is not the surface which deforms but the refractive index which changes in accordance with the infrared radiation. This procedure is not very sensitive, like all those based on the thermal variations of an optical parameter of a pure body.

By way of example of a reference illustrating the prior art French patent No. 71 08 811 (publication No. 2,081,937) may be cited, which discloses an image converter in which the liquid film, which is locally deformable as a function of the intensity of the infrared radiation, is supported by a freely deformable thin membrane.

The drawback common to all image converters utilizing a sensitive layer is that the latter must be permanently regenerated when the converter is being used. It is then necessary to provide, in addition, windshield wiper type devices which spread the layer on its support. The construction and use of such converters therefore necessarily pose technical problems. The support for the sensitive layer is not sufficiently strong to support the "windshield wiper" device. Moreover, the dimensions of the layer is perforce limited by imperatives of construction and renewal of the sensitive layer.

French patent No. 72 14 212 is concerned with a method comprising converting thermal images, particularly for viewing an object emitting thermal radiation, viz. infrared radiation, by forming a thermal image, namely that of the object, on a face of an interface which is covered with at least one layer of thermal radiation absorbing material, the distribution of the temperatures in the thermal image resulting in a variation of physical parameters of the layer.

The other face of the interface, which is reflective, is illuminated with a beam of parallel light rays the optical properties of which undergo during the reflection of the interface a corresponding variation of its optical properties. In the viewing plane a viewable secondary image exhibits the last named variation. The method according to the aforesaid French patent makes use of the index gradient and variation of the thickness of the layer of thermal radiation absorbing material.

To practice such a method the reflection of the beam of paralliel light rays is effected on a plane solid-solid or solid-liquid interface. The interface is for example defined by the hypotenuse face of a prism on which is deposited a solid layer such as a methacrylic ester.

SUMMARY OF THE INVENTION

An object of the present invention is to provide a method and device of the foregoing type which eliminates the above mentioned drawbacks.

An essential object of the invention is the provision of an image converter of high sensitivity, owing to the fact that the reflection or transmission of the radiation occurs at the liquid-liquid interface.

Another object of the invention is to provide an image converter having no mechanical means associ-

ated with the sensitive layer, the thin film being formed by a simple mixture of two liquids.

Still another object is an image converter in which the dimensions of the sensitive layer may be selected as large as desired, thereby permitting, in particular, monitoring bodies of great dimension.

According to the present invention there is therefore provided a method for converting thermal images, particularly with a view to viewing an object emitting electromagnetic radiation, viz. infrared radiation, in which a thermal image is formed, namely that of the object, to one side of a plane interface which is covered with at least one layer of electromagnetic radiation absorbing liquid material. The distribution of the temperatures in the thermal image then results in a variation of physical parameters of the layer. The other side of the interface which is reflective or transmissive, is illuminated by a beam of parallel light rays the optical properties of which undergo a corresponding variation during the reflecting or transmission by the plane interface. A viewable secondary image is formed in a viewing plane which exhibits the last-named variation. The method is characterized by the reflection or transmission of the beam of parallel light rays on a plane interface which is a low surface tension liquid-liquid interface obtained by mixing two partially miscible liquids at operating temperature and pressure.

The method according to the invention makes use of local deformation of the liquid-liquid interface depending on the intensity of the electromagnetic radiation, viz. infrared radiation, due to the formation of a thermal image on the interface. Indeed, the heating of the liquid-liquid system by absorption of the infrared radiation thus leading to the formation of a thermal image, creates the horizontal and vertical temperature gradients which deform the plane liquid-liquid interface. Hence a relief image is obtained. The deformation thus induced by the infrared beam focused on the surface yields an interface which acts as a spherical mirror relative to the beam of parallel light rays. The beam so modulated due to the deformation of the interface, is reflected or transmitted onto a viewing plane defined by screen or detection system which depending on the case may employ Schlieren, Schliereninterferential, phase contrast or holographic methods.

Because a deformable medium has a spatial frequency response of the band pass type, preferably a reflective grating with the thermal image is interposed thereby permitting the optimization of the response of the system of low frequencies. When the system is uniformly thermally radiated the function of the reflective grating is to create in any event temperature gradients in the electromagnetic radiation absorbing layer, therefore to detect a zero spatial frequency (the background).

The reflective grating, preferably metal, is placed in the vicinity of the free surface of the electromagnetic radiation absorbing solution. In another embodiment it is possible to place the reflective grating at the level of the liquid-liquid interface.

In a more advantageous embodiment the reflective grating is replaced with the image of a diffraction grating formed on the surface of the electromagnetic radiation absorbing solution. The infrared radiation and the image of the aforesaid diffraction grating are therefore projected simultaneously on the surface. The advantage of this method is that all the infrared radiation reaches the sensitive layer already spatially modulated, the energy used for forming the image of the grating being of much greater intensity than that of the IR radiation to be detected. The sensitivity can thus be augmented by a factor of two with respect to the aforesaid metal grating.

In a particularly preferred form of the method according to the invention the beam of parallel light rays or beam from a point source emanates from a source emitting visible light thereby permitting the conversion of the infrared image into a visible image.

According to another aspect of the invention there is provided a device for carrying out the method. The device comprises a thermal image converter comprising illuminating means providing a beam of parallel light rays or a beam emanating from a point source, a plane interface reflecting or transmitting the beam, an optical system particularly adapted for infrared radiation, and a viewing system. The interface is coated whith at least one layer of radiation absorbing liquid material on which the optical system forms a thermal image of an object emitting electromagnetic radiation. The distribution of the temperatures in the thermal image results in a variation of physical parameters of the layer. The reflected or transmitted beam then undergoes a corresponding variation of its optical properties, which variation is exhibited by the viewing system. the converter is characterized by plane interface comprising a low surface tension liquid-liquid interface obtained by mixing two liquids which are partially miscible at the temperature and pressure of used.

As aforementioned it is desirable to incorporate into the converter according to the invention a reflective grating located in the vicinity of the free surface of the thermal radiation absorbing surface or a diffraction grating the image of which is formed in the vicinity of the free surface.

A reflective grating, for example, of metal, is comprised of metal bars spaced from one another a distance equal to the width of the bars, the inter-bar spacing x of the grating being selected so that the ratio x/d is between 10 and 20 (d being the thickness of the layer of thermal radiation absorbing liquid).

In the event a diffraction grating is used the spacing between adjacent slits is equal to that of the aforesaid metal grating. The image of the diffraction grating on the free surface of the electromagnetic radiation absorbing liquid is conventionally formed with the aid of a lens and a semi-transparent glass plate disposed above the free surface.

In the description which follows the target designates the unit comprised of the liquids forming a liquid-liquid interface, it being understood it is in no way limited to a two-phase system and that the present invention may be practiced with a three-phase system.

In another particularly advantageous embodiment of the converter according to the invention a blocked target obtained in the following manner is employed.

A two-phase liquid system separated by a sharp, optically plane liquid-liquid interface is produced and the target is blocked by arranging a glass plate transparent to infrared radiation on the free surface of the thermal radiation absorbing liquid; a very sensitive and convenient to use target is thereby available owing to the fact that the target is blocked by a plate.

According to another very advantageous embodiment it is possible to use a three-phase target, that is, the reflecting or transmitting interface is covered with two layers of liquid material. The three-phased unit is then

covered as above with an IR transparent plate to provide a blocked target of more convenient use.

The essential feature of the invention is the combination of two partially miscible liquids I and II producing an optically plane, low surface tension liquid-liquid interface.

To obtain this liquid-liquid interface one proceeds in the following manner: two liquids I and II are mixed which have the basic property of being partially miscible at operating temperature and pressure. Under these conditions two mutually saturated solutions A and B are obtained which yield in mechanical equilibrium a sharp optically plane surface of separation called a liquid-liquid interface I_{AB}. When the converter according to the invention is used, the heating of the liquid-liquid system by absorption of the infrared radiation creates temperature gradients which deform the plane interface separating the two saturated solutions A and B depending on the intensity of the incident infrared radiation. The fact that the liquid-liquid interface has a low surface tension facilitates the deformation of the interface.

These two liquids I and II must be different as regards refractive index and density, and it is mandatory that they be of low viscosity. For instance, the liquid I has a viscosity between 0.5 and 100 centistokes at the operating temperature. The thermal image is formed in the saturated solution A (carried liquid) with a high concentration of liquid I.

Solution A has near-infrared absorbing properties, that is, in a spectral band between 1 and 100 microns. It is especially preferred that liquid I should absorb the infrared radiation in the 8–12 micron or 3–5 micron spectral band which are atmospheric ranges which correspond to the maximum emission of the bodies at ambient temperature.

Solution A is a thin film of low viscosity the thickness of which is between 5 and 300 microns, preferably between 5 and 200 microns, and more particularly between 5 and 100 microns. Solution A possesses a surface tension highly dependent upon the temperature. This is a necessary condition which contributes to the sensitivity of the device. The surface tension with the air is, for example, of the order of 0.02 dyne/cm °C. at 20° C. The mixture of partially miscible liquids I and II also presents another advantage: the surface tension of the interface which separates the two saturated solutions A and B may be of very low magnitude. The interfacial tension between the solutions A and B is, for example, of the order of 1 dyne/cm or less at ambient temperature. It becomes zero at the critical temperature of miscibility. Then the two-phase system disappears and a single liquid phase takes its place.

The last condition to be met to obtain a very sensitive device is that solution A have low thermal conductivity.

The invention provides an image converter of high sensitivity. The sensitivity is all the higher as the surface tension of the liquid-liquid interface is low. Indeed, it has been found that there is a direct relationship between the sensitivity and the surface tension. In practice an interface will be used having a surface tension less than 1 dyne/cm and preferably of the order of about 0.1 dyne/cm.

For liquid I are especially used substituted polysiloxanes, silicone oils, acetic acid, methanol, phenylacetic acid, butyric acid, diphenylamine, propionic acid, p-nitrochlorobenzene, acetic anhydride, acetonitrile, camphor, formic acid, cyclopentane, methylcyclopentane, cyclohexane, or methylcyclohexane, and for liquid II are used monobromonaphtalene, carbon tetrachloride, carbon sulfide, or methylene iodide.

The converter according to the invention can operate with total reflection as well as with transmission. When operating with total reflection a prism is provided under the two-liquid system, the refractive index of liquid II being greater than that of liquid I and equal or substantially equal to that of the prism. In this case, for good sensitivity, solution B has to be transparent to visible light.

When operating with transmission the only condition to be satisfied is the use of liquids I and II having very different indices.

The illuminating means of the converter according to the invention is not critical and comprises a monochromatic or polychromatic, coherent or incoherent source. Using a source of visible light then permits infrared images to be converted into visible images. The infrared optical system is a dioptric, catadioptric or catoptric lens system. The viewing system comprises a screen or a detection system employing schlieren, schlieren-interferential, phase contrast or holographic methods.

If a screen is used as the viewing system it may be arranged either in the vicinity of the liquid-liquid interface or when operating with total reflection, directly on the emergent face of the prism.

Another solution for detecting the deformation of the liquid-liquid interface consists in observing the colors associated with the deformation of the movable face of solution A when they change locally as a function of the intensity of infrared radiation striking solution A. According to a variant it is also possible to make the deformation visible with normal incident, illumination.

According to a preferred embodiment there is provided a thermal image converter for viewing an object emitting infrared radiation, the converter comprising means for receiving infrared radiation emitted by the object being viewed, said means comprising an infrared radiation sensitive target, means for illuminating the infrared radiation sensitive target, means for processing and/or making visible the light rays emerging from the target, the converter being characterized in that the sensitive target comprises a first container containing two liquids partially miscible at operating temperature and pressure forming a low-surface-tension, active liquid-liquid interface, one side of the first container facing the object being transmissive of infrared radiation, a second container containing a compensating liquid-liquid interface which is substantially parallel to the active interface, whereby infrared radiation emitted by the object is focused on the less dense liquid in the first container, the means for illuminating providing a beam of parallel light rays illuminating the active interface, the angle of incidence of the rays on the active interface being chosen so as to provide substantially total reflection, rays reflected by the active interface then being reflected by the compensating interface and forming a beam of rays capable of being viewed in the means for processing and the parallel light beam illuminating the target traversing it without any substantial change in direction irrespective of the spatial position of the converter.

In a preferred form of the foregoing embodiment the target essentially comprises two containers disposed with parallel faces of a glass rhombohedron, the first container with the active interface, a side of the first container remote from the rhombohedron and facing

object having a window transparent to infrared radiation, such as a germanium window, an inert gas such as nitrogen being contained in the free space in the first container between the liquid layer and the window, the second container essentially containing a mercury layer and a liquid whose refractive index is substantially identical with that of the glass of the rhombohedron, the last mentioned liquid being disposed between the layer of mercury and the adjacent face of the rhombohedron.

In an embodiment of this kind which comprises a rhombohedron interposed between the two containers of the target, the free faces of the rhombohedron are perpendicular to the central rays of the light beam illuminating the target. The angle of reflection of the light beam on the active interface is advantageously 60°.

Preferably the means for receiving the infrared radiation comprise, in the direction of the radiation, a lens system and a diaphragm, e.g., an iris diaphragm, for focusing the radiation on the less dense liquid contained in the first container of the target.

Preferably the means for illuminating the target comprise a collimator including a light source emitting visible light, a condenser, a diaphragm, and a lens system thereby providing a beam of parallel light rays.

Preferably the means for processing and viewing the light rays emerging from the target comprise an afocal system with two cylindrical lenses, a Porro prism, a ground glass plate, and a bi-ocular lens.

The converter according to the present invention admits of numerous applications, in military, medical and industrial fields. This device serves to render bodies visible by means of their heat radiation situated in the infrared spectrum and for measuring surface temperature gradients of the bodies.

The converter according to the invention is therefore used whenever remote temperature or radiancy distributions are to be observed.

Without attempting an exhaustive list of the possibilities of use the different fields in which the use of the converter is desirable we may cite by way of example: aeronautics and space, automobile, mechanics, metallurgy, electrolysis of metals, bonding, glass-making, paper-making, boilers and refrigeration, building, monitoring the production and distribution of electrical power, electronics, volcanology, botany, mapping ocean currents, etc.

An embodiment of the invention is described hereinafter, by way of example and in no way limiting, with reference to the accompanying drawings.

BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

FIG. 1 represents the combination of two liquids permitting an optically plane liquid-liquid interface to be obtained;

FIG. 2 represents the deformation of the interface in FIG. 1 under the action of infrared radiation;

FIG. 3 represents the infrared receiver operating with total reflection in the converter embodying the invention;

FIG. 4 represents the converter embodying the invention operating with total reflection;

FIGS. 5–8 represent other embodiments of the target employing the converter embodying the invention and

FIG. 9 represent the converter embodying the invention operating with normal transmission.

FIG. 10 diagrammatically represents a best mode of execution of the converter embodying the invention.

DETAILED DESCRIPTION OF THE PREFERRED EMBODIMENTS

FIG. 1 represents the equilibrium state resulting from the combination of two liquids I and II. Thus there is shown a two-component saturated solution B which is denser than solution A and therefore under it. The system is maintained in a container C. The concentration of one of the components I or II in each of solutions A and B only depends upon the temperature and pressure of the system. As a function of these parameters a saturated solution A may be obtained at a particular concentration and at the same time a thin liquid layer may be easily provided of uniform thickness adjustable as desired, on a liquid support without restrictions as to its spread. In addition the system is stable, i.e., when the saturated solutions are stirred they become mixed. Then the unmixing occurs quickly: under the force of gravity the solutions A and B separate to regain their starting equilibrium, that is to say, two liquid phases separated by a plane interface I_{AB}, each of the solutions A and B having the same concentration as initially.

The plane interface I_{AB} forms a sharp, optically plane, surface of separation.

When the two-phase system is radiated by localized infrared radiation emanating from an infrared source (not shown) and focused by an infrared optical system 0_1 deformations as represented in FIG. 2 are obtained. The infrared radiation creates, by heating, horizontal tensions on the free surface of the solution A due to the thermal variation of the surface tension of this interface. A flowing of solution A is established to balance these tensions and creates a fluctuation of the normal pressure (hydrostatic+viscous) on the liquid-liquid interface I_{AB}, which deforms. Solution A, called the carried liquid, is a thin film of low viscosity. Film thicknesses between 5 and 200 microns have yielded the best results. As a particularly appropriate liquid I silicone oils having a viscosity between 0.5 and 100 centistrokes may be cited. This liquid I is mixed with an aromatic liquid II, as for example monobromonaphtalene.

FIG. 3 represents a detailed view of the infrared target with a solution B having an index greater than that of solution A, i.e., operating with total reflection. A previously saturated mixture of two liquids is deposited on one of the faces of prism P. The index of the prism is close to that of the carrier liquid, i.e. saturated solution B so that rays of infrared radiation encounter only a single interface, that is, liquid-liquid interface I_{AB}. The container C containing the liquids and carried by one of the faces of the prism is covered by a glass plate transparent to infrared radiation thereby avoiding the evaporation of the liquids and their contamination.

FIG. 4 is an over-all view of the infrared image converter according to the invention operating with total reflection, that is to say, using the infrared target of FIG. 3. The converter comprises an infrared optical system 0_1 which focuses the radiation to be converted, emanating from an infrared source, not shown, on the free surface of solution A. An infrared image is thus created on the free surface which is converted into a thermal image by the absorption of the infrared radiation thereby causing a deformation of the liquid-liquid interface I_{AB}. There is provided on the other side of the liquid-liquid interface I_{AB} a mono- or polychromatic source S emitting a beam of light rendered parallel after traversing two lenses L_1 and L_2. The parallel beam of light is totally reflected by the deformed interface. The

deformation of the interface is observed by the variation of the intensity of the reflected beam on a screen E placed immediately after prism P.

FIG. 5 represents another embodiment of the target. A two-component saturated solution A is provided in container C carried by a two-component solution B. These solutions result from a combination of two liquids I and II. A reflective grating G, for example of metal, is provided above solution A, the spacing x of the grating is such that the ratio x/d is between 10 and 20 (d being the thickness of the layer of solution A).

Instead of providing a reflective grating G above the solution A it is also possible to arrange it at the level of the interface between solution A and solution B (not shown). With this target it is possible to operate with transmission as well as total reflection.

If operating with total reflection a prism is arranged under solution B (as in FIG. 3).

FIG. 6 represents a third embodiment of the target for use in the converter according to the invention. There is formed, with the aid of radiation absorbed by solution A, image R' of diffraction grating R with the aid of lens L_3 and glass plate L_1 transparent to infrared radiation and reflective for the radiation impinging R. The infrared radiation is projected simultaneously on the target.

The device permits the sensitivity to be doubled relative to that of the target of FIG. 5.

The diffraction grating spacing used is such that the ratio of the spacing of the grating to the thickness of the film of solution A ranges between 10 and 20.

FIG. 7 represents a fourth embodiment of the target which operates with total reflection. A blocked target is constructed by depositing on the two-phase system, solution A solution B, an IR transparent glass plate L. Under the two-phase system is a prism the index of which is substantially equal to that of solution B.

Such a receiver may be used for transmission by eliminating the prism P.

FIG. 8 represents a final embodiment of the target There is provided, as in FIG. 7, a glass plate L and a prism P but the liquid system is not a two-phase but a three-phase system. Three solutions A, B and C are present. Liquid B absorbs infrared radiation, on the other hand liquid A allows infrared radiation to pass therethrough. The interfacial tension between liquids B and C is very low and the thermal variation of the surface tension of the interface between liquids A and B is substantial. The thermal image is detected by the deviation of the rays reflected on the movable interface between B and C.

The interest of this system, as that of FIG. 7, is to have a blocked target of more convenient use.

This target may be used for transmission by eliminating prism P.

FIG. 9 represents the image converter according to the invention operating with normal transmission. This converter comprises an infrared optical system 0_1 which focuses the radiation to be converted, emanating from an infrared source, not shown, on the free surface of solution A contained in container C. An infrared image is thus created on this free surface which is converted into a thermal image by absorption of infrared radiation thereby causing a deformation of the liquid-liquid interface. There is provided on the same side of the liquid-liquid interface as mono- or polychromatic source S emitting a beam of light rendered parallel after traversing two lenses L_1 and L_2. The parallel beam of light totally reflects on mirror M and traverses target des nated C. The deformation of the interface by the var tion of the intensity of the beam falling on a screen placed just after the target, is viewed.

The preferred embodiment of the converter is d grammatically illustrated in FIG. 10 of the drawin This converter was realized by the French firm Soci d'Optique, Précision, Electronique et Mécanique (So lem) 102, rue Chaptal, Levallois-Perret, France.

The infrared image converter diagrammatically re resented in FIG. 10 as an easily transportable compa device for converting into visible images infrared rad tion emitted by an object to be monitored.

The device comprises, first of all, means for receivi infrared radiation comprising, in the direction of t radiation, an infrared radiation lens system 11, a d phragm 12 and a sensitive target or cell designated general reference number 13.

The lens 11 is made of germanium and is designed f a wave-length of 10 μm. Its focal length is 75 mm, aperture is f/2, its field of view is 25 mm. The d phragm 12 is an iris diaphragm.

The target is made up of a glass rhomboherdron and two containers 15 and 16 respectively bonded two parallel faces 17 and 18 of the rhombohedron. Co tainer 15 contains liquids 19 and 20 which, according the invention, are partially miscible at operating te perature and pressure. An inert or inactive gas 21, su as dry nitrogen, is provided above the liquid 19. T wall 22 of the container 15 facing the lens 11 is transp ent and formed as a germanium window. It goes wi out saying that the container comprises means (n shown) for making it gas-tight and liquid-tight. T thickness of liquid 19 is of the order of 100 μm and t of liquid 20 is of the order of 1 mm. Container 16 esse tially contains a mercury layer or bath 23 separat from the adjacent face 17 of the rhombohedron 14 b liquid 24 the index of refraction of which is identi with that of the glass of the rhombohedron. The liqu 19 and 20 together form an active interface 25, a liquids 23 and 24 form between each other an interf 26 called a compensating interface. The dimensions interfaces 25 and 26 are of the order of 40 mm×40 m their operative areas being reduced to about 25 mm× mm.

The resolving power of the infrared lens 11 must n interfere with the quality of the image yielded by t interface 25. The interface 25 has a resolving power five lines per millimeter over the entire field.

In the arrangement represented in FIG. 10 lens 1 mounted vertically above interface 25. Of couse focus of the lens 11 and the diameter of the aperture diaphragm 12 may be adjusted. The lens may be focus between one meter and infinity. The aperture of diaphragm is adjustable from f/2 to f/22. Such adju ments are performed in a manner well known to d having ordinary skill in the art by means of rin mounted on the lens system 11.

In a refined embodiment the lens system 11 may surmounted by a mirror (not shown). The mirror is t pivotally mounted for displacement in elevation, e between 35° and 55°. The mirror is fixed to the l system and the lens system-mirror unit forms a modu The elevation control is effected by the support co mon to the lens system and the mirror.

The device further comprises a collimator designa by general reference 27. The collimator 27 comprise lens 28, a diaphragm 29, a condenser 30 and a li

source 31. The light source 31 comprises a mercury arc lamp, type HBO 50W/3, cooled by free flowing air. Diaphragm 29 has a circular aperture of diameter 50 μm positioned at the focal point of lens 28. The condenser 30, diameter 15 mm and focal distance 15 mm, is interposed between the light source 31 and diaphragm 29. An anticaloric filter (not shown) may be placed between the light source 31 and the condenser 30 as close as possible to the condenser. The lens 28 has a focal length of 105 mm and a relative aperture of f/4 (ϕ=25 mm). The diffusion spot at the center of the field is 0.5 mrd. Its field is 5 mrd. It is corrected at infinity and treated for visible light.

The face 33 of the rhombohedron facing collimator 27 is perpendicular to central ray 32 emitted thereby. Face 33 is advantageously treated by a nonreflective coating for visible light.

The arrangement of the collimator 27 relative to the target 13 is such that the parallel visible light rays (represented by central ray 32) totally reflecting from active interface 25. The selected angle of reflection is equal to 60°. The beam 35 reflected by the interface 25 is then reflected into compensating interface 26. The reflected beam 36 passes perpendicularly through face 34 of the rhombohedron. Face 34 is also treated with a nonreflective coating for visible light.

The rays 36 emerging from the rhombohedron 14 is processed or viewed in an arrangement which will now be described. The arrangement of assembly, designated by general reference numeral 37 comprises viewing means. The assembly essentially includes anafocal lens system formed by two cylindrical lenses 38 and 39. The divergent lens 38, 10 diopters (f=100 mm), has an operative area of 13 mm×25 mm. The convergent lens 39, five diopters (f=200 mm) has a diameter of 25 mm. After convergent lens 39 in the direction of the rays 36 the viewing means comprises a Porro prism 40. The prism 40 is composed of four mirrors defining two perpendicular dihedral angles. The first dihedral is stationary and the second dihedral is movable along a short distance (e.g. 10 cm) parallel to the middle incident ray.

The beam of visible rays emerging from the Porro prism 40 is received on a screen 41. The screen comprises, for example, a ground glass plate on one side, the ground glass plate facing a bi-ocular lens 42. The biocular lens has a focal length of 80 mm, the screen being located at 75 mm from its main plane, thereby ultimately forming a virtual image at one meter from the screen.

The device diagrammatically represented in FIG. 10 and described hereinabove operates as follows. The infrared radiation emitted by the object 10 is focused in the lens system 10 to form an infrared image on the less dense liquid 19. The less dense liquid 19 is heated locally in accordance with the pattern of the image of the object 10. Since the surface tension between liquids 19 and 20 contained in the first container 15 varies with temperature, the interface 25 between liquids 19 and 20 deforms and in turn may act as an object.

The collimator 27 illuminates interface 25 with parallel visible light at an angle of incidence producing total reflection from interface 25 (angle of reflection equal to 60°). The beam reflected by the interface 25 traverses the rhombohedron 14, and is in turn reflected from the mercury layer 23 (compensating interface 26) contained in the second container 16. The beam carries a visible image corresponding to the deformation of interface 25. Still, direct viewing of the image is not possible because it is inverted and anamorphized. The reflected beam 36 is then processed by the afocal lens system (magnification 2X) including lenses 38 and 39, and by Porro prism 40 which erects the image. The image is formed on the ground glass plate 41 which is viewed through a bi-ocular lens 42.

Thanks to the device represented in FIG. 10 the free surface 23 of the mercury remains permanently parallel to active interface 25 thus having a compensation function. The parallel beam emerging from collimator 27 traverses the target 13 retaining on the average its initial direction. The unit made up by the collimator 27 and the viewing means 37 thus remains in a stationary position relative to the target 13. Such an arrangement provides compensation for changes of direction of orientation of the device and avoids optical adjustments after displacement even if the target is not maintained horizontally.

The rest of the description will be made with reference to examples of practical preparations of the combination of liquids I and II.

EXAMPLE I

Liquid I is a silicone oil (polydimethylsiloxane mixture) and liquid II is a monobromonaphtalene.

The physical properties of the pure liquids are indicated in the following table:

	Monobromonaphtalene	Silicone oil
Surface tension of pure liquid with air at 20° C.	37.5 dyne/cm	18.5 dyne/cm
specific gravity at 20° C.	1.48 g/cm^3	0.9 g/cm^3
refractive index for D line of sodium at 20° C.	1.658	1.396
kinematic viscosity at 20° C.	3.56×10^{-2} stoke	2.83×10^{-2} stoke
heat conductivity		3×10^{-4} W/cm. °C.
specific heat		0.33 cal/g °C.
diffusivity		10^{-3} cm^2/sec.

The physical properties of the system are as follows:

Surface tension of the monobromonaphtalene saturated with silicone oil with air:

21.5 dynes/cm at 20° C.

Surface tension of Silicone oil saturated with monobromonaphtalene with air:

19.6 dynes/cm at 20° C.

Surface tension of the surface of separation between the two mutually saturated solutions:

0.8 dyne/cm at 20° C.

Kinematic viscosity at 20° C. of the monobromonaphtalene saturated with oil:

3.55×10^{-2} stoke

Kinematic viscosity at 20° C. of the oil saturated with monobromonaphtalene:

2.77×10^{-2} stoke

The association of these two liquids is seen to permit a very low surface tension to be obtained, therefore susceptible of being deformed easily.

The expression $(i/a_{AB})(da_A/dT)$ may be used at the criterion of sensitivity of the converter according to the present invention, a_A designating the surface tension of saturated solution A with air, and a_{AB} designating the surface tension of the interface I_{A-B}.

Indeed $d\alpha/dT$ A represents the thermal effect which destabilizes the saturated solution A and generates convection currents.

That is the motor effect and $(1/\alpha AB)$ represents the mechanical effect of the aforesaid instability which acts on the liquid-liquid interface and deforms it.

That is the sought-after effect.

Assuming that the deformation of the liquid-liquid interface is slight relative to the thickness of the film of solution A which is so in practice, it is found that for a given sensitivity:

$$(1/\alpha AB)\,(dO_A/dT)$$

the deflection of the interface is inversely proportional to the thickness of solution A. Moreover, the thickness of solution A may not be diminished indefinitely: the deformation of the interface must follow the variations in temperature of the solution A with a low time constant. The thickness of the saturated solution A therefore is a minimum which taking account the thermal sensitivity sought and the spatial resolution desired, must be suitably selected as a function of the parameters of the materials. In an actual construction a time constant of the order of 1/10 second was obtained with a thickness of the solution A of about 100 microns.

EXAMPLE II

This example concerns other usable liquids I and II and combinations of such liquids.

(1) Liquid II-monobromonaphtalene (n=1.66 d=1.48).

Liquid I acetic acid—CTS 42° C.
methanol—CTS 62° C.
phenylacetic acid—CTS 55° C.

(2) Liquid II—carbon tetrachloride $CC1_4$ (n=1.46) (d=1.60)

Liquid I acetic acid—CTS 25° C.
butyric acid—CTS 25° C.
diphenylamine—CTS 28° C.
propionic acid—CTS 25° C.
p-nitrochlorobenzene—CTS 50° C.

(3) Liquid II—carbon sulfide CS_2 (n=1.628) (d=1.30)

Liquid I acetic anhydride—CTS 30° C.
acetonitrile—CTS 51.5° C.
butyric acid—CTS 25° C.
camphor—CTS 25° C.
formic acid—CTS 43° C.
methanol—CTS 36° C.
p-nitrochlorobenzene—CTS 50° C.
propionic acid—CTS 25° C.

(4) Liquid II methylene iodide $CH_2 I_2$ (n=1.742).

Liquid I cyclopentane	CTS 30.5° C.
methylcyclopentane	CTS 44° C.
cyclohexane	CTS 31°0 C.
methylcyclohexane	CTS 45° C.
acetic acid	CTS 45° C.

(CTS is the Critical Temperature of the Solution) (n is the refractive index for the D line of sodium at 20° C.) (d=density at 20° C.).

What we claim is:

1. In a method for converting thermal images into secondary images comprising the steps of: providing a plane optical interface having a layer of thermal radiation absorbing material on one face, the other face being reflective or transmissive, forming a thermal image on said one face resulting in a variation of the physical parameters of said layer, illuminating said other face with a beam of light which undergoes during reflec or transmission by said interface a corresponding va tion of its optical properties, and forming in a view plane a viewable secondary image exhibiting said named variation, the improvement comprising forn said interface as a liquid-liquid interface by mixing liquids partially miscible at operating temperature pressure.

2. The method according to claim 1, further comp ing arranging in the viscinity of the free surface of s layer of thermal absorbing liquid a reflecting gratin

3. The method according to claim 1, further comp ing forming in the vicinity of the free surface of s layer of thermal absorbing liquid an image of a diffr tion grating.

4. The method according to claim 1, 2 or 3, when said beam emanates from a source of visible li whereby said secondary image is a visible image.

5. The method according to claim 1, wherein s thermal image is formed by electromagnetic radiati emanating from an object.

6. A thermal image converter for converting therm radiation emitted by an object, comprising a plane o cal interface, a layer of thermal radiation absorbi liquid disposed to one side of said interface, said int face being reflective or transmissive, an optical syst for focusing thermal radiation emitted by the object forming a thermal image on said layer, the temperat distribution of said thermal image resulting in a va tion of physical parameters of said layer, means illuminating the other side of said interface providin beam of parallel light rays or a beam of light fro point source, viewing means being arranged to rece the beam reflected or transmitted by said interf which undergoes a corresponding variation to its o cal properties, the improvement comprising said int face being a liquid-liquid interface having low surfa tension formed by a mixture of two liquids, liquids I a II, which are partially miscible at operating temperatu and pressure.

7. The converter according to claim 6, further co prising a reflecting grating located in the vicinity of free surface of said layer of thermal radiation absorbi liquid.

8. The converter according to claim 6, further co prising a diffraction grating the image of which formed in the vicinity of the free surface of said layer thermal radiation absorbing liquid.

9. The converter according to claim 6, further co prising a glass plate transparent to infrared radiati being disposed in the vicinity of the free surface of s layer of thermal radiation absorbing liquid.

10. The converter according to claim 6, there bei another layer liquid material disposed to said one side said interface.

11. The converter according to claim 6, wherein s plane interface being defined by liquid-liquid interf I_{AB} between two manually saturated solutions A and cbtained by mixture of two partially miscible liquid and II, liquid I having a viscosity between 0.5 and centistokes at the operating temperature, solution having near-infrared absorbing properties, a low h conductivity and a low interfacial tension with soluti B in the order of 1 dyne/cm, a layer thickness betwe 5 and 300 microns.

12. The converter according to claim 11, wherein said liquid I is absorbant of infrared radiation in the spectral band of 8–12 or 3–5 microns.

13. The converter according to claim 6 or 11, wherein said liquid I is selected from the group consisting of substituted polysiloxanes, silicone oils, acetic acid, methanol, phenylacetic acid, butyric acid, diphenylamine, propionic acid, p-nitrochlorobenzene, acetic anhydride, acetonitrile, camphor, formic acid, cyclopentane, methylcyclopentane, cyclohexane, methylcyclohexane and wherein liquid II is selected from the group consisting ofmonobromonaphtalene, carbon tetrachloride, carbon sulfide and methylene iodide.

14. The converter according to claim 11, said interface being totally reflective, further comprising a prism supporting said liquids defining said liquid-liquid interface, the refractive index of said liquid II being greater than and substantially different from that of said liquid I and equal to or substantially equal to that of said prism.

15. The converter according to claim 14 wherein said viewing means comprises a screen arranged directly at a face of said prism from which said reflected beam emerges.

16. The converter according to claim 11, said interface being partially reflective or transmissive, wherein said indices of refraction of said liquid I and said liquid II are different from each other.

17. The converter according to claim 6, wherein said means for illuminating comprises a source of visible light whereby said converter converts said thermal image into a visible image.

18. The converter according to claim 17, said source of visible light being a source monochromatic or polychromatic, coherent or incoherent light.

19. The converter according to claim 6, wherein said viewing means comprises a screen.

20. The converter according to claim 19, wherein said screen is placed in the vicinity of said liquid-liquid interface.

21. The converter according to claim 6, wherein said viewing means comprises a detecting system.

22. The converter according to claim 6, wherein said means for illuminating comprises a source of visible light.

23. The converter according to claim 6, wherein said viewing means provides a measurement of surface temperature gradients of the object emitting thermal radiation.

24. The converter according to claim 6, wherein said infrared optical system comprises a lens system.

25. A thermal image converter for viewing an object emitting infrared radiation, the converter comprising means for receiving infrared radiation emitted by the object being viewed, said means comprising an infrared radiation sensitive target, means for illuminating the infrared radiation sensitive target, means for processing and/or making visible the light rays emerging from the target, the converter being characterized in that the sensitive target comprises a first container containing two liquids partially miscible at operating temperature and pressure forming a low-surface-tension, active liquid-liquid interface, one side of the first container facing the object being transmissive of infrared radiation, a second container containing a compensating liquid-liquid interface which is substantially parallel to the active interface, whereby infrared radiation emitted by the object is focused on the less dense liquid in the first container, the means for illuminating providing a beam of parallel light rays illuminating the active interface, the angle of incidence of the rays on the active interface being chosen so as to provide substantially total reflection, rays reflected by the active interface then being reflected by the compensating interface and forming a beam of rays capable of being viewed in the means for processing and the parallel light beam illuminating the target traversing it without any substantial change in direction irrespective of the spatial position of the converter.

26. The converter according to claim 25, wherein said target essentially comprises two containers disposed on parallel faces of a glass rhombohedron, the first container comprising the active interface sensitive to infrared radiation, the side of the first container opposite the rhombohedron and facing the object having a germanium or the like window transparent to infrared radiation, an inert gas such as nitrogen being contained in the free space in the first container between the liquid layer and the window, the second container essentially containing a mercury layer and a liquid whose refractive index is substantially identical with that of the glass of the rhomdohedron, the last mentioned liquid being disposed between the layer of mercury and the adjacent face of the rhombohedron.

27. The converter according to claim 26 wherein the free faces of the rhombohedron are perpendicular to the central rays of the light beam illuminating the target.

28. The converter according to claim 27 wherein the angle of reflection of the light beam on the active interface is advantageously 60°.

29. The converter according to claim 25 wherein the means for receiving the infrared radiation comprise, in the direction of the radiation, a lens system and a diaphragm, e.g. an iris diaphragm, for focusing the radiation on the less dense liquid contained in the first container of the target.

30. The converter according to claim 25 wherein the means for illuminating the target comprise a collimator including a light source emitting visible light, a condenser, a diaphragm, and a lens system thereby providing a beam of parallel light rays.

31. The converter according to claim 25 wherein the means for processing and viewing the light rays emerging from the target comprises an afocal system with two cylindrical lenses, a Porro prism, a ground glass plate, and a bi-ocular lens.

* * * * *

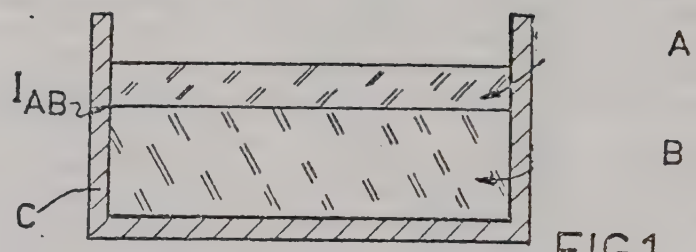


FIG.1

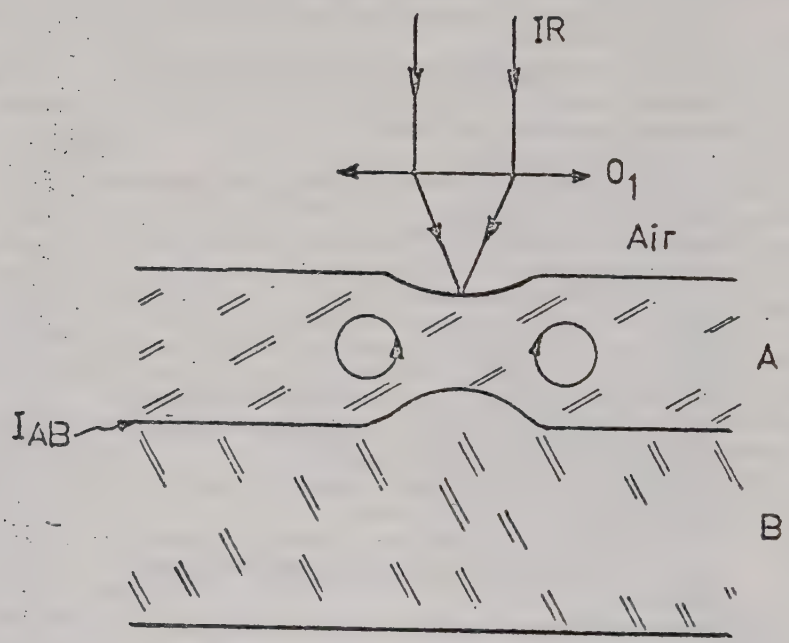


FIG.2

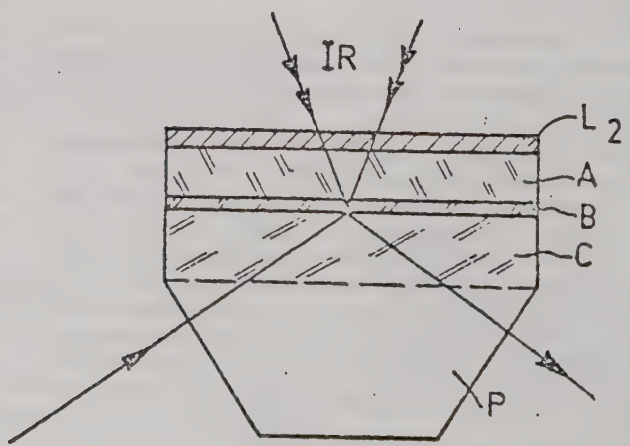


FIG.8

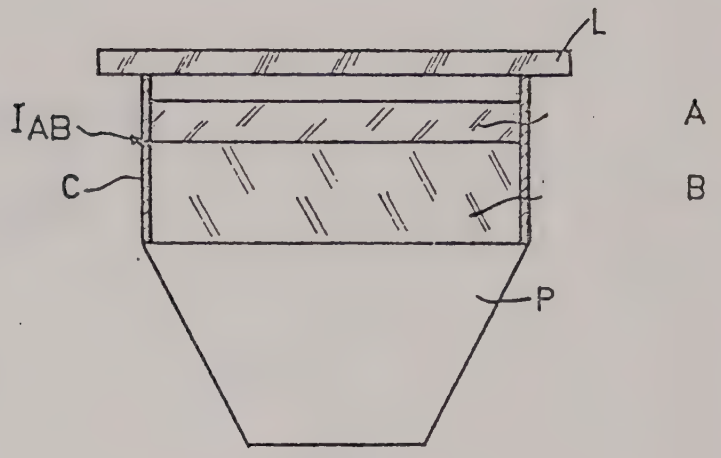


FIG.3

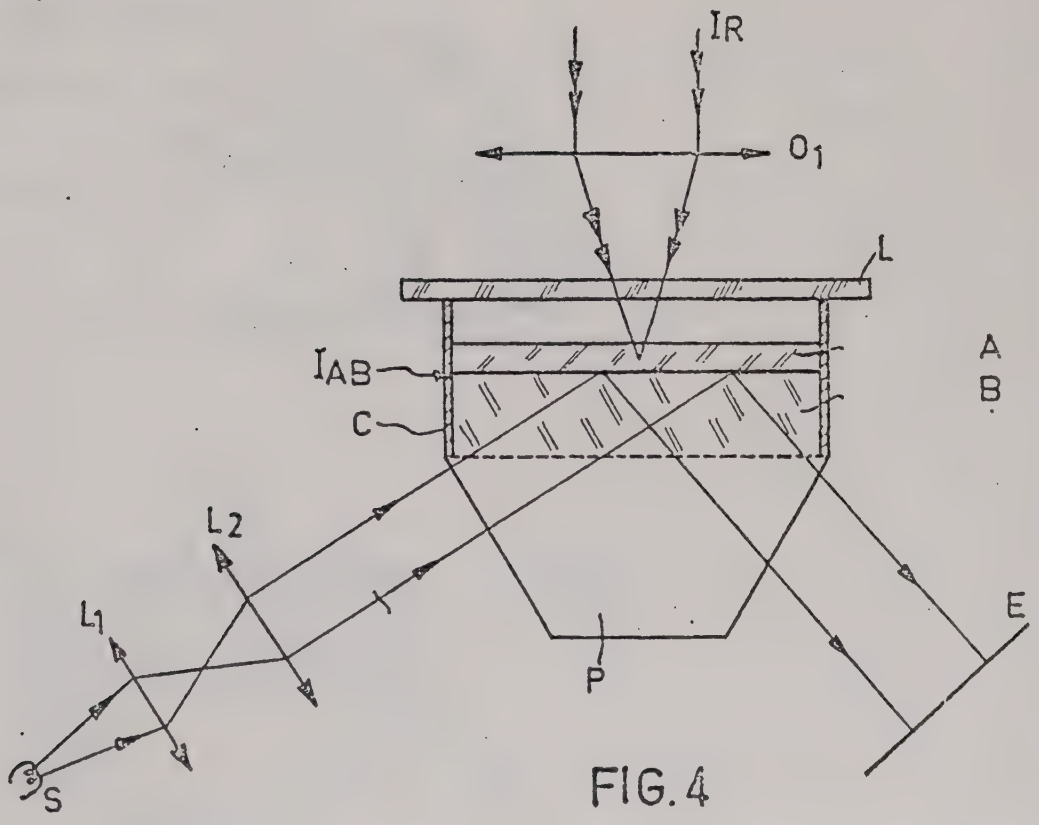


FIG. 4

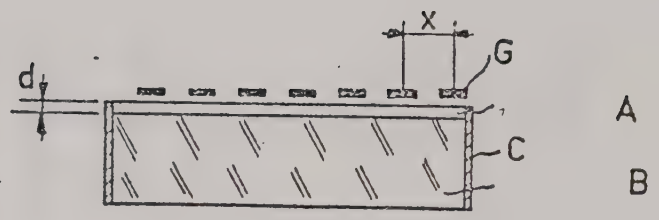


FIG.5

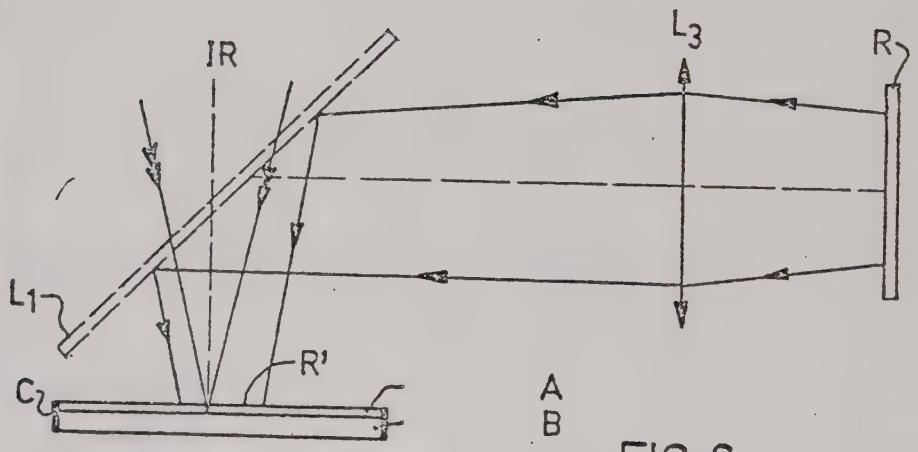


FIG.6

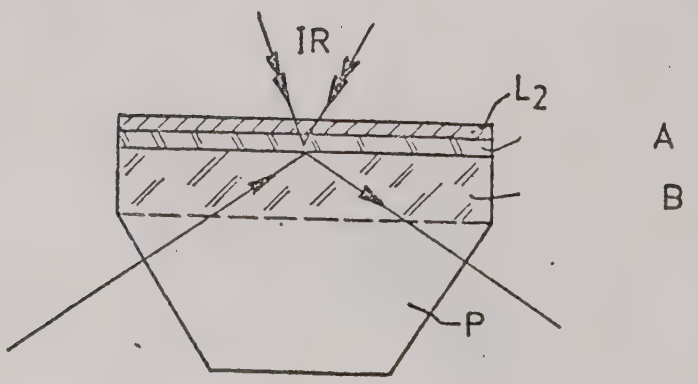


FIG.7

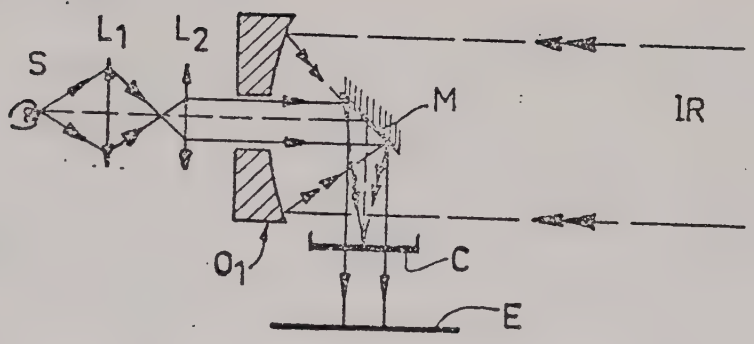


FIG.9

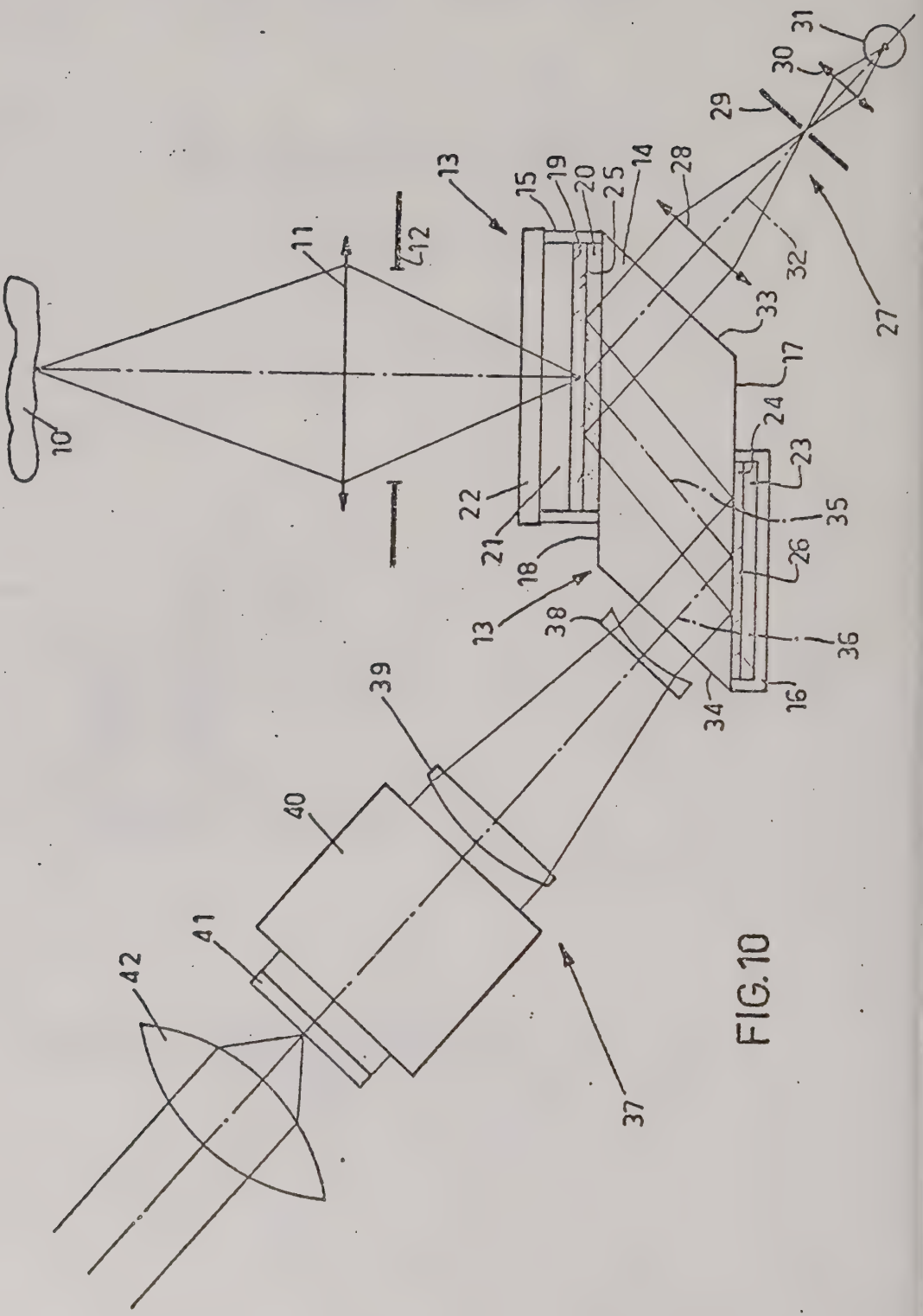

10
11
12
13
15
19
20
25
14
28
29
30
31
32
33
17
24
23
35
26
36
16
34
27
22
21
18
38
39
40
41
42
37

FIG. 10

ANNEXE III

CONTRAT D'AIDE A L'INNOVATION

RAPPORT ANNUEL 1981

(Extrait)

III - DISPOSITIF POUR CARACTERISER LA REPONSE SPATIALE ET TEMPORELLE DE L'IMAGEUR INFRAROUGE

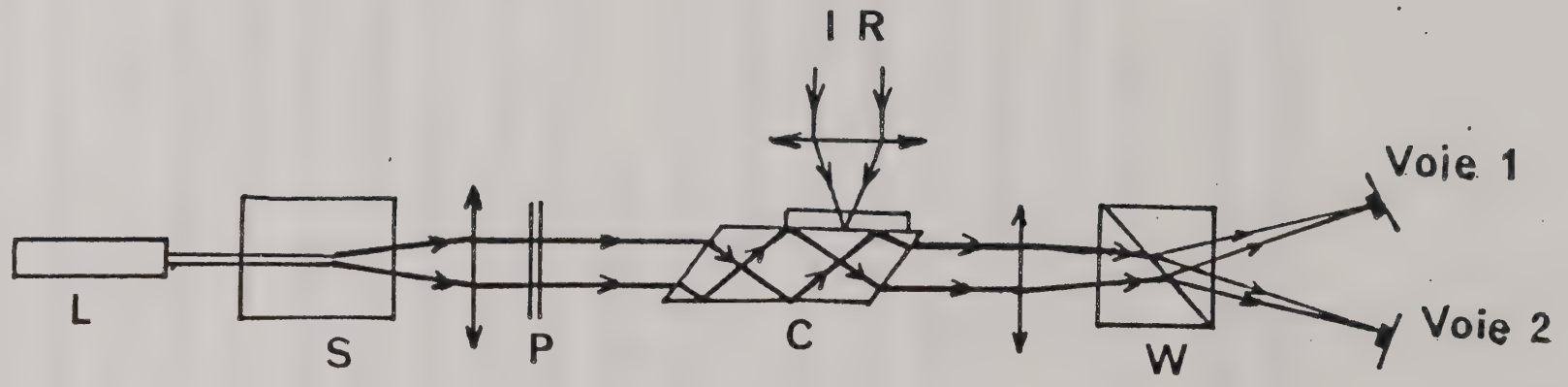
L'étude théorique a montré que la résolution spatiale du système bicouche était loin d'être atteinte et nous pensons que le système optique de visualisation, bien que très simple est peu favorable pour obtenir une bonne image. Dans ces conditions nous avons envisagé de lire la déformation par balayage de l'interface liquide-liquide, avec un pinceau étroit de photons. Bien que cette technique n'est pas apportée une amélioration sur la résolution , elle nous a permis de mesurer d'une part la largeur de la déformation, et d'autre part d'étudier son comportement dans le temps.

. 1 . Description du dispositif

La figure n° 5 représente le schéma du dispositif. Le récepteur est lu par balayage d'un faisceau laser He-Ne de 5mW(L) avec un système constitué d'un déflecteur acousto-optique et d'un miroir vibrant (S). Le centre de rotation du déflecteur acousto-optique est conjugué avec le miroir vibrant. Le faisceau laser est ensuite focalisé sur l'interface liquide-liquide, mais pour assurer un balayage uniforme on utilise une lentille qui maintient le rayon axial du faisceau, parallèle à une direction fixe. La surface balayée est de 7 x 10 mm^2. Le point d'analyse sur l'interface à un diamètre minimum de 100 µm. La fréquence de balayage est de 25 images/seconde. Un prisme de Wollaston sépare en deux parties, linéairement et orthogonalement polarisées, le faisceau lumineux. Sur la voie 1 on mesure le signal de référence I_1. Sur la voie 2 on place sur le récepteur un diaphragme dont le diamètre est égal au diamètre du pinceau lumineux

../..

- FIGURE N° 5 -



SCHEMA DU DISPOSITIF A BALAYAGE DE L'INTERFACE LIQUIDE-LIQUIDE

L LASER HeNe , S DEFLECTEUR ACOUSTO-OPTIQUE, P DEMI-ONDE,
C CELLULE, W WOLLASTON

réfléchi par l'interface (Φ = 800 µm). Lorsque l'interface se déforme, le faisceau lumineux est dévié et le récepteur 2 délivre un signal I_2 variable, dépendant de la pente locale de l'interface liquide-liquide. On détecte alors la déflexion angulaire du pinceau lumineux avec une précision de l'ordre de quelques minutes d'angle. Un amplificateur différentiel soustrait les deux signaux $I_1 - I_2$ préalablement équilibré grâce à une demi-onde placée en P. La mesure du signal est effectuée sur un oscilloscope synchronisé avec le faisceau de balayage de l'interface.

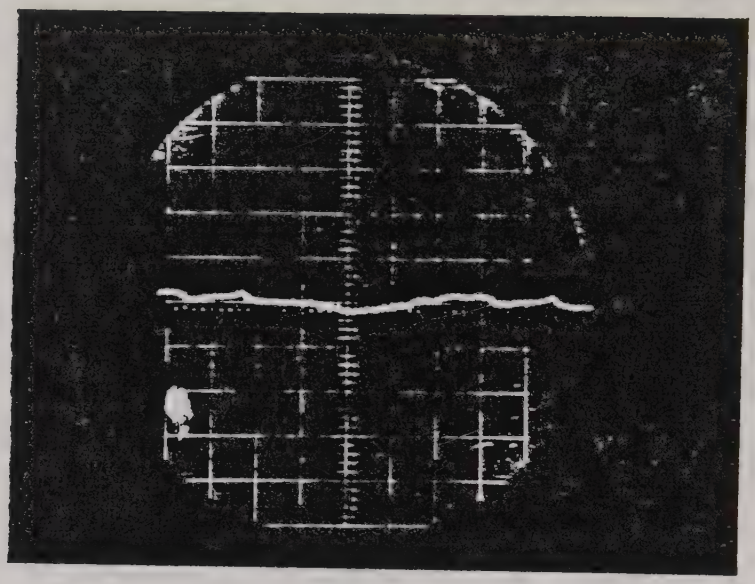
. 2 . Mesures et Résultats expérimentaux

a) Etendue de la déformation en fonction du flux IR

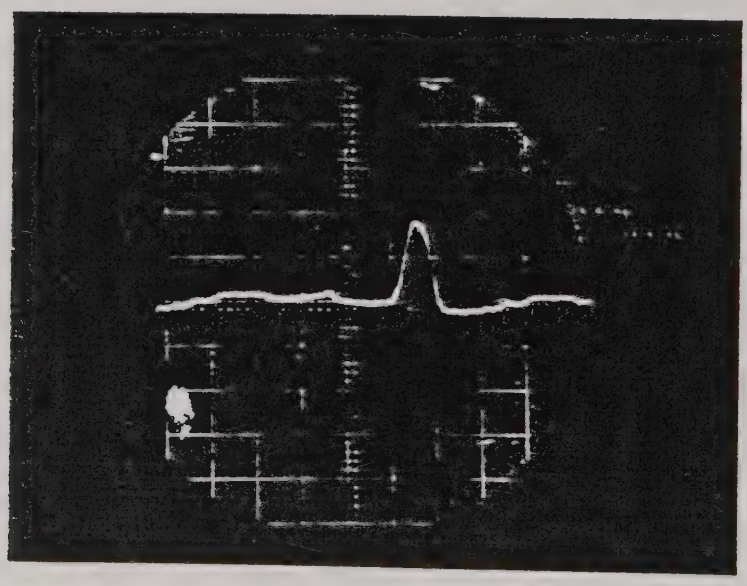
On focalise sur la couche sensible à l'aide d'un objectif IR en Ge traité, l'image d'un trou source de 1mm de diamètre, éclairé par un Globar étalonné. Le grandissement est de 3/100, c'est à dire que sans aberrations, l'image du trou source aurait un diamètre de trente microns. On sélectionne une ligne de balayage, que l'on déplace sur l'interface liquide-liquide perpendiculairement à sa direction. Lorsque celle-ci arrive sur la déformation un signal apparaît sur l'écran (figure n°6) avec une amplitude qui dépend de la position de la ligne vis-à-vis du centre de la déformation. Un étalonnage préalable permet de connaître à tout instant la position exacte de la ligue de balayage sur la couche sensible. De cette manière il a été possible de mesurer l'étendue de la déformation de l'interface liquide-liquide en fonction du flux infrarouge reçu par le récepteur. Les résultats sont donnés par la courbe de la figure n°7. On constate que l'étendue de la déformation croît au départ linéairement en fonction du flux infrarouge pour atteindre un palier aux très fortes valeurs. Nous pensons d'ailleurs qu'au delà de 18 µ.watt toute la couche d'huile est

../..

- FIGURE N° 6 -



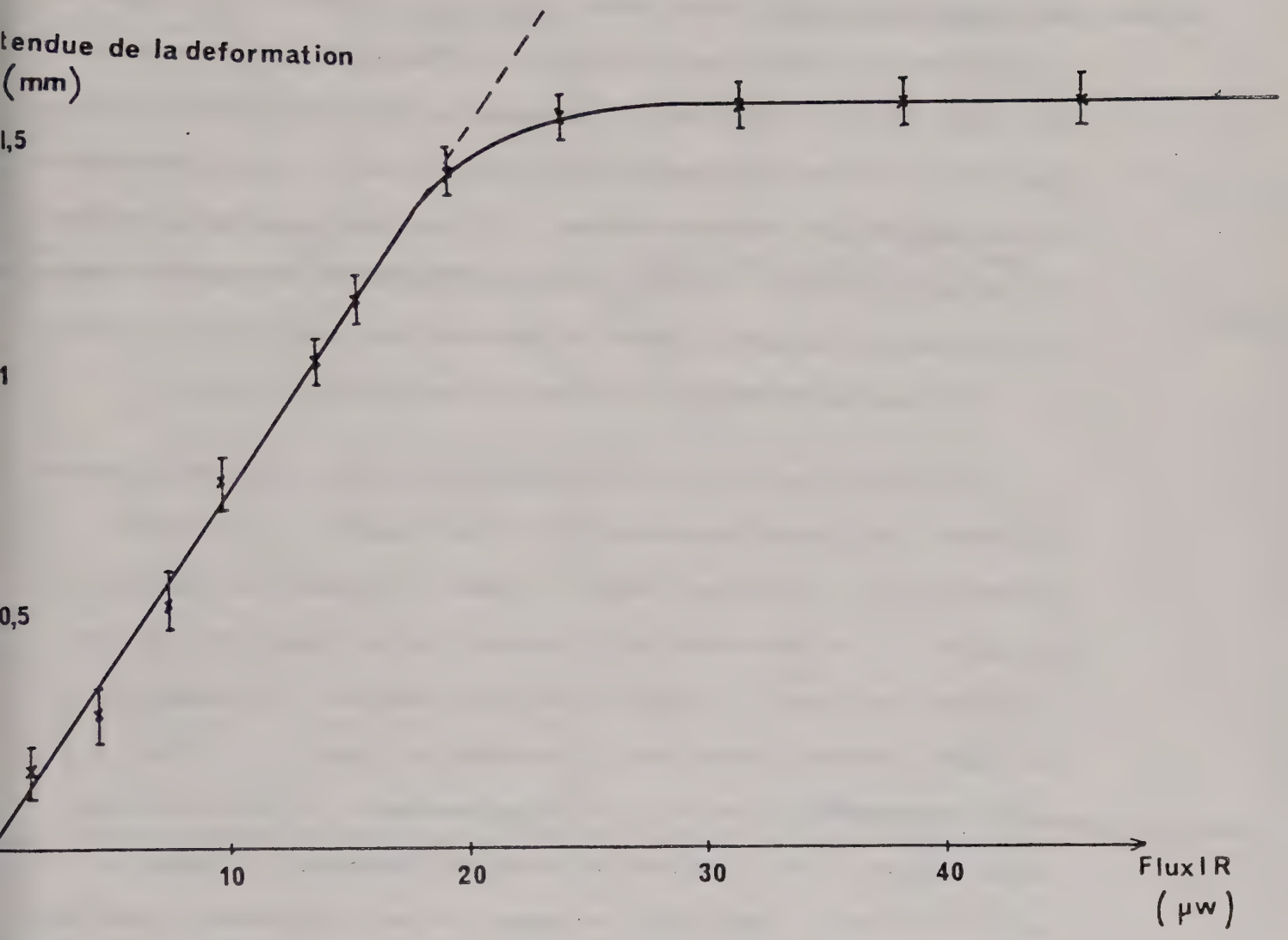
1 - L'INTERFACE EST PLANE



2 - L'INTERFACE EST DEFORMEE

SIGNAL DONNE PAR L'OSCILLOSCOPE LORSQUE LA LIGNE DE BALAYAGE RENCONTRE UNE DEFORMATION DE L'INTERFACE LIQUIDE-LIQUIDE -

- FIGURE N° 7 -



ETENDUE DE LA DEFORMATION DE L'INTERFACE LIQUIDE-LIQUIDE EN FONCTION DU FLUX INFRAROUGE -

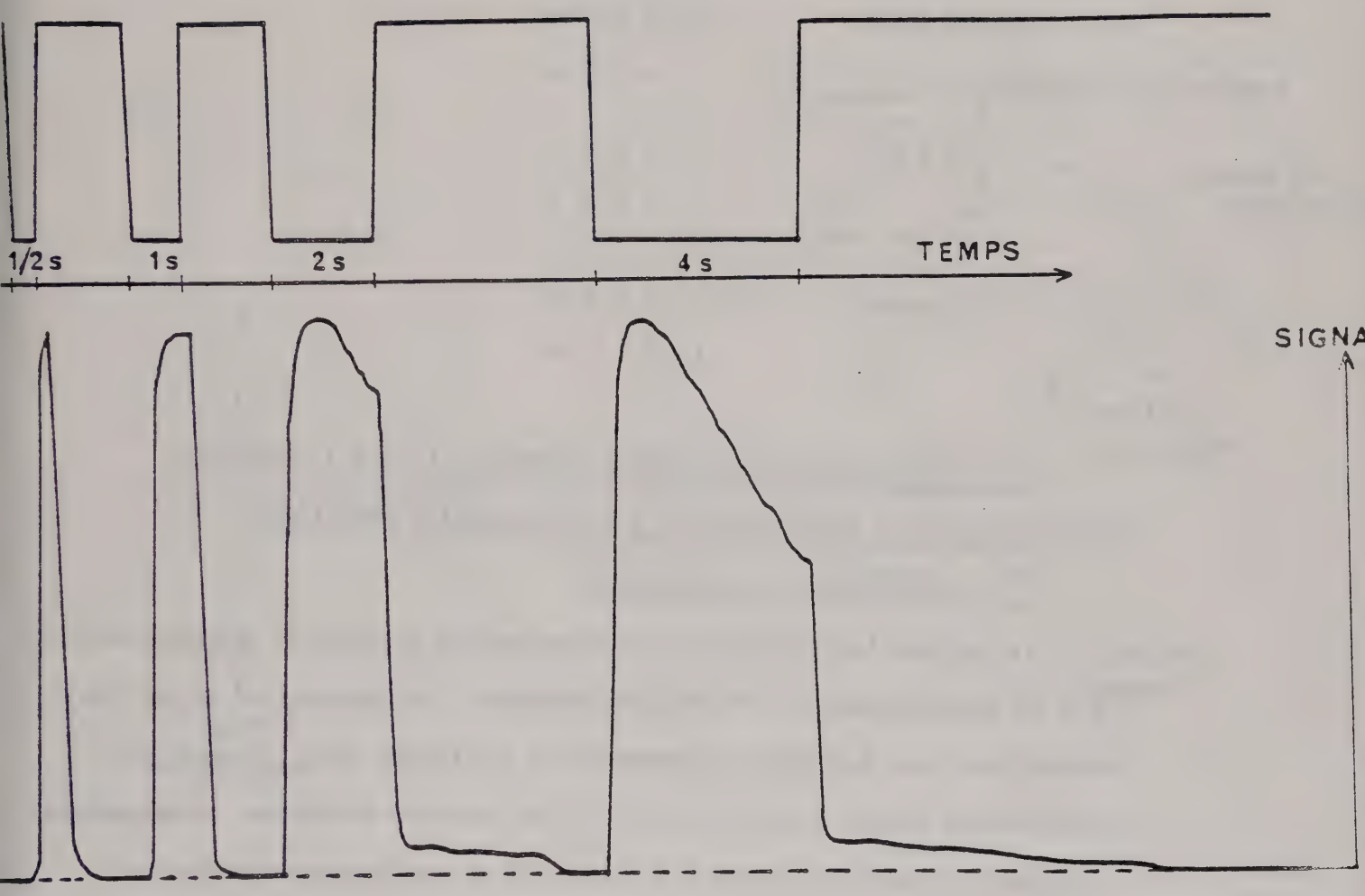
chassée, et que le récepteur est devenue insensible à toute variation du flux incident. Il faut remarquer que ces mesures ne donnent que l'étendue spatiale de la déformation et rien d'autre. Il n'a pas été possible d'obtenir, la forme et l'amplitude de celle-ci, notre point d'analyse sur l'interface liquide-liquide étant trop large. Cependant cette étude est intéressante car elle permet de mesurer la déformation sur l'interface elle-même sans faire intervenir la distance du plan d'observation à l'interface. Cette courbe nous apprend aussi autre chose : la plus petite déformation mesurée est d'environ 150 µm ± 50 µm pour un mélange ternaire de 80 µm d'épaisseur environ. On approche ainsi de la résolution théorique qui est de 160 µm (3 paires de ligne par mm) c'est-à-dire 2 x 80µm.

b) Réponse dynamique de l'interface en fonction du flux I.R.

On dispose sur la voie infrarouge un obturateur électrique capable de donner des temps d'ouverture de 1/15 de seconde... à quelques secondes pour le signal excitateur. A l'aide du dispositif de balayage on centre sur la déformation de l'interface liquide-liquide une ligne de balayage pour obtenir un signal d'amplitude maximum. On enregistre sur une table traçante à deux voies, l'évolution du signal $I_1 - I_2$ dans le temps et la durée d'ouverture de l'obturateur pour un flux infrarouge donné (figure n° 8). Ceci nous a permis de déterminer un temps de montée du signal, c'est-à-dire, le temps que met la déformation pour être la plus grande possible, pour un flux I.R. et une durée d'ouverture de l'obturateur donnés. Il a été aussi possible de définir un temps de descent c'est-à-dire le temps que met l'interface liquide-liquide pour revenir à sa position d'équilibre à partir de la fermeture de l'obturateur. Si on considère que le meilleur signal est celui qui est symétrique pour les temps de

../..

- FIGURE N° 8 -



ENREGISTREMENTS TEMPORELS DE LA DEFORMATION DE L'INTERFACE POUR DIFFERENTES DUREES DU SIGNAL EXCITATEUR -

montée et de descente voir figure n° 8, il est nécessaire de couper le signal I.R. au bout du temps t1 puis recommencer lorsque la déformation a complétement disparu, c'est-à-dire au bout du temps t_2. Pour les trois flux I.R. utilisés on a obtenu :

pour 9,6 µW $t_1 = 0,5$ s.
$t_2 = 1,4$ s.

19,2 µW $t_1 = 0,5$ s.
$t_2 = 0,8$ s.

38,4 µW $t_1 = 0,5$ s.
$t_2 = 2$ s.

IV - ETUDE DE LA REPONSE TEMPORELLE DE L'IMAGEUR INFRAROUGE EN FONCTION DE LA FREQUENCE SPATIALE

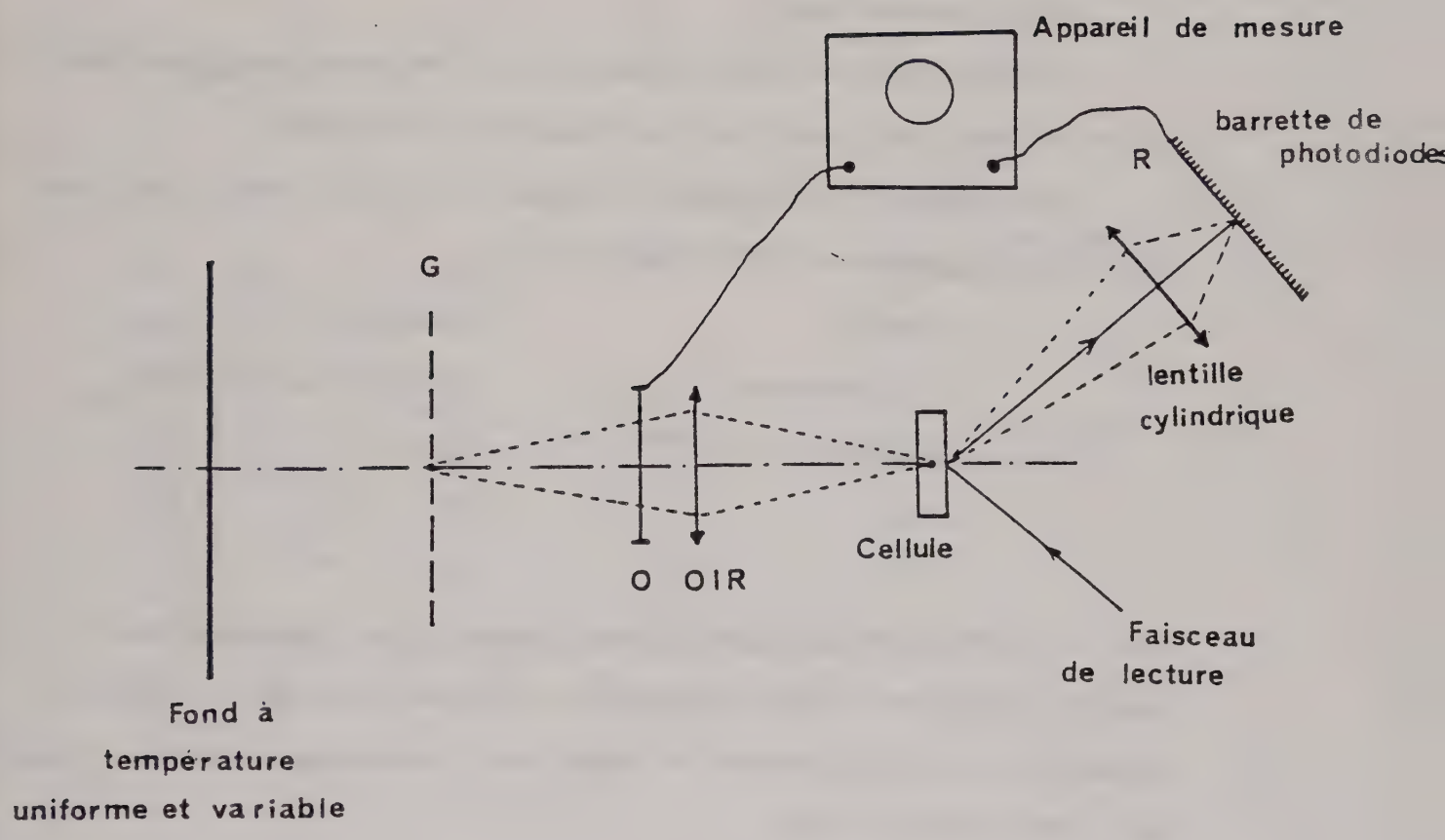
. 1 . Description du dispositif

On utilise le prototype de la Sopelem qui contient le mélange ternaire (8 % de iodonaphtalène) décrit précèdemment. Le faisceau de lecture est focalisé sur une barrette de photodiodes R (figure n° 9), le plan de visualisation observé étant situé à 20 cm derrière la cellule. Le signal est visualisé au cours du temps sur l'écran d'un oscilloscope à mémoire. L'ouverture de l'obturateur O, placé devant l'objectif I.R. est synchronisé avec le déclenchement de l'oscilloscope. On déplace par rapport au prototype une grille métallique G devant un fond à température uniforme connue.

. 2 . Mesures et résultats expérimentaux

La durée d'ouverture de l'obturateur varie de 1/50 de seconde à plusieurs dizaines de secondes. On mesure toutes les 1/10 de seconde l'amplitude du signal enregistré sur l'écran à mémoire, après l'ouverture

- FIGURE N° 9 -



SCHEMA DU DISPOSITIF POUR ETUDIER LA REPONSE DE L'IMAGEUR INFRAROUGE A UN OBJET PERIODIQUE -

et la fermeture de l'obturateur. Ces mesures sont faites pour différentes valeurs du pas de l'image de la grille sur la couche sensible, pour des durées d'ouverture variables et pour des écarts en température du fond par rapport à la température ambiante de 10°C à 20°C. Les résultats sont reportés sur les courbes des figures n° 10 à 12.

On a constaté que :

a) l'apparition du signal dépend de la fréquence spatiale utilisée : il est d'autant plus court que les fréquences sont faibles.

Par exemple, pour obtenir un signal de 0,5 mv d'amplitude, pour un niveau d'entrée de 10°C il faut :

durée	fréquence
0,2 seconde	0,5 faire de ligne/mm
0,25 "	0,8 "
0,5 "	0,5 "
2 "	1,22 "

b) l'amplitude du signal évolue d'autant plus rapidement que la couche d'huile est faible. Par exemple avec une grille de 0,8 paire de lignes par mm, pour obtenir un signal dont l'amplitude serait 1 mv, avec un Δ T= 10°C il faut :

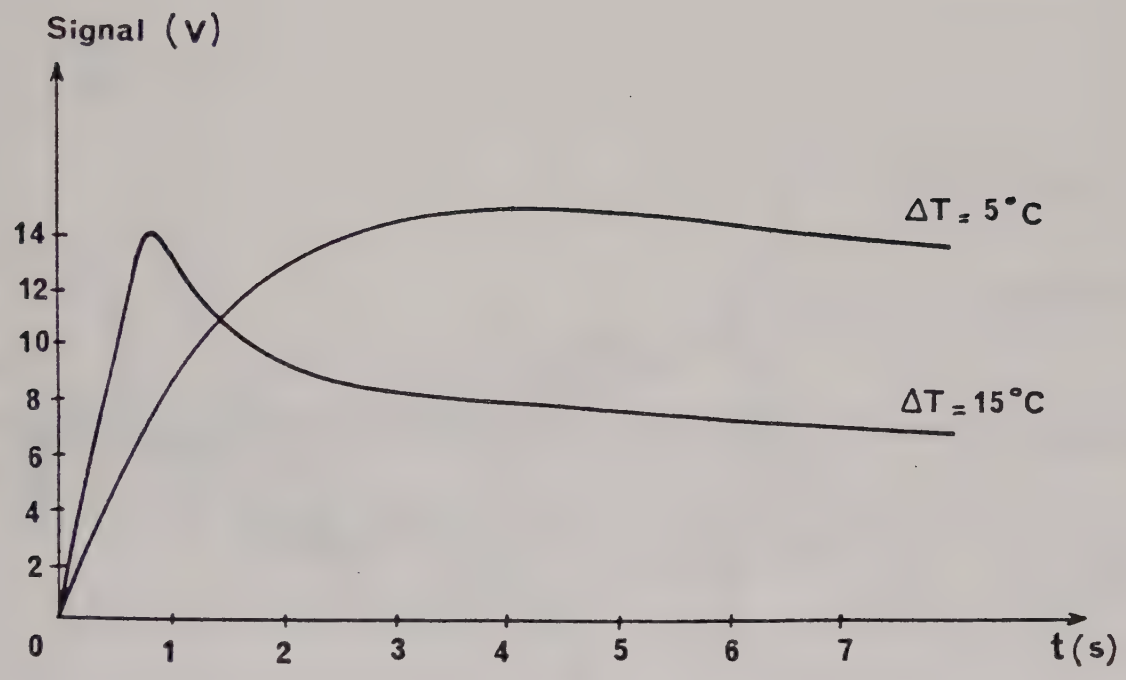
avec e ~ 200 µm	3 secondes
avec e ~ 100 µm	1,2 seconde

c) le comportement temporel du signal, avec le mélange ternaire est complexe.

si le récepteur répond faiblement à l'excitation extérieure.- Par exemple, une haute fréquence, ou bien un niveau d'entrée faible.- la réponse est quasiment symétrique : l'apparition et la disparition du signal sont à peu près de même durée (voir figure 12).

../..

- FIGURE N° 10 -

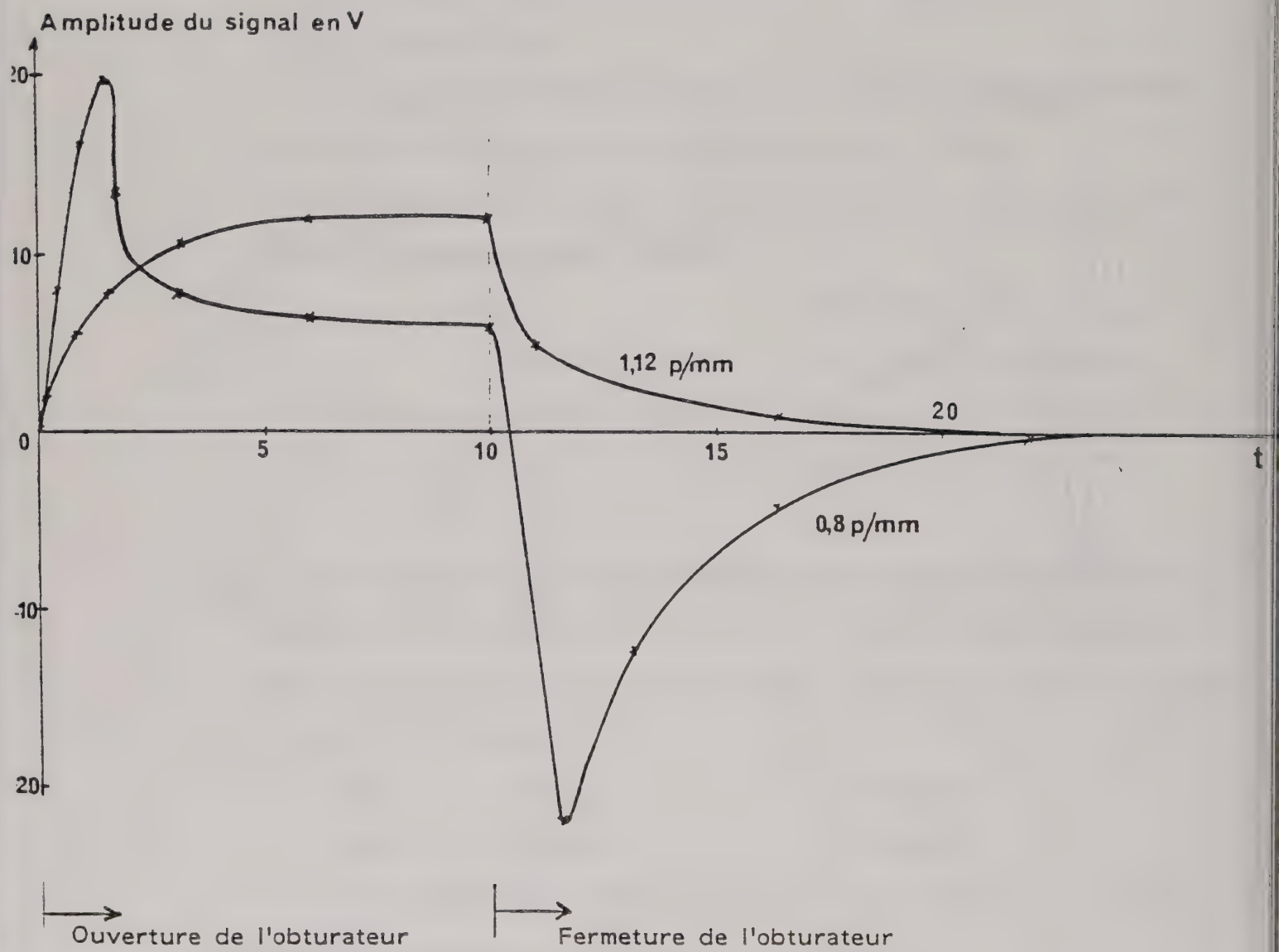


REPONSE DE L'INTERFACE LIQUIDE-LIQUIDE A UNE BASSE FREQUENCE, POUR DEUX NIVEAUX D'ENTREE -

mélange ternaire
f = 0,8 p.l./mm

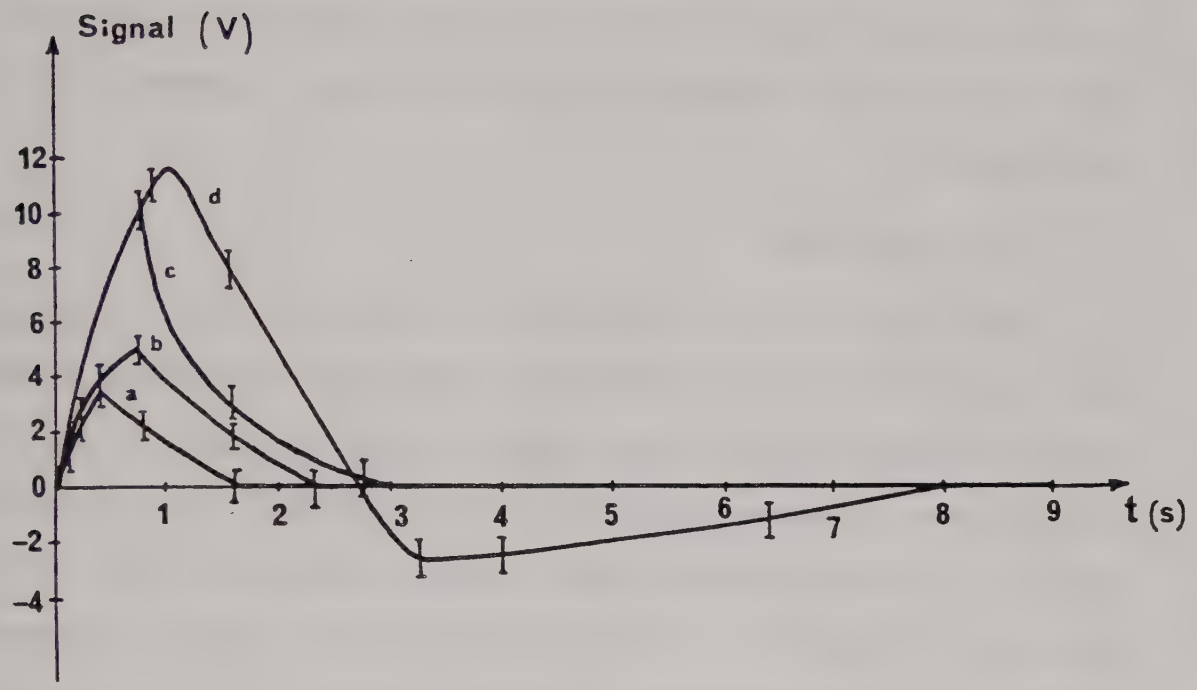
Distance du plan de visée à l'interface : 20 cm

- FIGURE N° 11 -



REPONSE DE L'INTERFACE LIQUIDE-LIQUIDE POUR DEUX FREQUENCES - APPARITION ET DISPARITION DU SIGNAL -

- FIGURE N° 12 -



EVOLUTION DE LA REPONSE DE L'IMAGEUR INFRAROUGE EN FONCTION DE L'ECLAIREMENT POUR UNE FREQUENCE SPATIALE DONNEE -

ΔT = 10 °C
f = 0,8 paire de lignes / mm
mélange ternaire
Distance du plan de visée à l'interface : 20 cm
a = 1/15 s. b = 1/8 s. c = 1/4 s. d = 1/2 s.

si le récepteur répond fortement à l'excitation extérieure - par exemple un niveau d'entrée fort ou bien une basse fréquence - l'amplitude du signal passe par un maximum, pour décroître et se stabiliser ensuite. A la fermeture de l'obturateur, il apparaît dans ce cas là une inversion du signal (Figure n° 11). Ce phénomène n'a été observé qu'avec le mélange ternaire. Il n'a pas lieu avec le mélange binaire. En outre, il est indépendant de la position de l'écran de visualisation. Il n'est donc pas lié à l'éclairage mais au comportement dynamique de l'interface liquide-liquide.

. 3 . Conclusion

Cette étude a montré que lorsqu'on observe une image infrarouge dans un plan situé à 20 cm derrière la cellule avec le prototype SOPELEM, les basses fréquences de l'image (quelques paires de ligne/mm) apparaissent d'abord avant les hautes fréquences. Si les premières ont un niveau d'entrée trop fort, la disparition des basses fréquences donneront lieu au phénomène d'inversion du signal qui rallonge considérablement le temps d'effacement de l'image. Si l'on veut augmenter la cadence d'image il faut éviter que l'appareil fonctionne avec ces basses fréquences qui marquent profondément l'interface liquide-liquide. Une solution possible pour résoudre ce problème est de moduler l'interface liquide-liquide à l'aide d'une grille, de telle sorte que toutes les fréquences de l'image, et en particulier les basses fréquences soient translatées de part et d'autre de la fréquence de la grille.

RESUME :

Ce mémoire décrit une expérience d'imagerie infrarouge passive, basée sur la modulation d'une interface liquide-liquide, provoquée par l'absorption de l'image infrarouge par le système diphasique. Après avoir étudié théoriquement le comportement de la surface libre d'un film liquide mince perturbé thermiquement, on analyse le couplage hydrodynamique de deux couches minces superposées, permettant d'amplifier la modulation de la surface libre. Pour atteindre ce résultat, il a été recherché expérimentalement, à partir de plusieurs mélanges, celui donnant une tension interfaciale la plus faible possible, tout en conservant une différence d'indice de réfraction suffisante pour visualiser la modulation de l'interface liquide-liquide.

La seule méthode optique retenue pour cela a été l'ombroscopie par réflexion totale, dont on analyse et discute les propriétés de détection. Enfin, on décrit un appareil, basé sur les propriétés amplificatrices de l'interface liquide-liquide pour visualiser le rayonnement infrarouge émis par les corps à la température ambiante. Les résultats obtenus sont comparables à ceux d'une caméra thermique classique.

MOTS CLES :

- Hydrodynamique (Effet Marangoni)
- Mécanique d'une interface (liquide-gaz et liquide-liquide)
- Mélanges binaires et ternaires (Etude physico-chimique)
- Optique (Ombroscopie)
- Imagerie Infrarouge (Instrumentation)